

Etude et optimisation de l'efficacité énergétique d'enseignes lumineuses sans mercure excitées en régime d'impulsions électriques

Sébastien Alain Mathieu Point

▶ **To cite this version:**

Sébastien Alain Mathieu Point. Etude et optimisation de l'efficacité énergétique d'enseignes lumineuses sans mercure excitées en régime d'impulsions électriques. Plasmas. Université d'Orléans, 2008. Français. NNT : . tel-00722581

HAL Id: tel-00722581
https://theses.hal.science/tel-00722581

Submitted on 2 Aug 2012

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.

UNIVERSITÉ D'ORLÉANS

ÉCOLE DOCTORALE SCIENCES ET TECHNOLOGIES

LABORATOIRE GREMI

THÈSE présentée par :

POINT Sébastien

soutenue le : **18 Novembre 2008**

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

Spécialité : Physique des gaz et des plasmas

Etude et optimisation de l'efficacité énergétique d'enseignes lumineuses sans mercure excitées en régime d'impulsions électriques

THÈSE dirigée par :

J.M. Pouvesle	Directeur de Recherche, Directeur du GREMI, CNRS-Université d'Orléans

RAPPORTEURS :

P. Guillot	Professeur, Responsable équipe DPHE, Université J-F Champollion
A. Rousseau	Directeur de Recherche, Directeur du LPTP, Polytechnique Paris

JURY :

P. Guillot	Professeur, Responsable équipe DPHE, Université J-F Champollion
A. Rousseau	Directeur de Recherche, Directeur du LPTP, Polytechnique Paris
F. Streiff	Ingénieur Dept. Procédés Industriels et agricoles, ADEME
E. Robert	Chargé de Recherche, GREMI, CNRS-Université d'Orléans
G. Poulet	Professeur, Directeur adj. du LPCE, CNRS-Université d'Orléans
R. Mahiou	Directeur de Recherche,Directeur du LMI, CNRS- Université Blaise Pasca
J.M. Pouvesle	Directeur de Recherche, Directeur du GREMI, CNRS-Université d'Orléans

Etude et optimisation de l'efficacité énergétique d'enseignes lumineuses sans mercure excitées en régime d'impulsions électriques

Etude et optimisation de l'efficacité énergétique d'enseignes lumineuses sans mercure excitées en régime d'impulsions électriques.

Cette thèse présente les résultats de travaux de recherches menés sur les décharges luminescentes pulsées de néon xénon destinées à être utilisées en remplacement des décharges gaz rares-mercure pour les applications d'enseignes lumineuses publicitaires ou architecturales. Les enseignes lumineuses sont formées par des tubes fluorescents à cathodes froides fonctionnant à haute tension. Ceci les distingue notamment des tubes fluorescents pour l'éclairage général qui fonctionnent avec le même type de mélange mais à basse tension avec des cathodes chaudes préchauffées.

Ces recherches ont bénéficié d'un partenariat GREMI-ADEME-Région Centre-Aupem Sefli, et sont motivées par la volonté de proposer une technologie sans mercure, qui est un élément toxique pour l'environnement et qui nécessite la mise en place de filières de récupération et de valorisation lourdes. On s'est attaché à vérifier et préciser certains mécanismes fondamentaux de la décharge. Ces travaux ont aussi permis de dégager des conditions permettant d'optimiser les caractéristiques des enseignes néon-xénon en terme de flux lumineux, d'efficacité énergétique, et de durée de vie. A l'issue de cette thèse, la durée de vie et l'efficacité des tubes fluorescents à cathodes froides basés sur une décharge pulsée de néon xénon les placent entre les lampes à incandescence et les tubes fluorescents au mercure. Des pistes existent pour poursuivre l'amélioration de l'efficacité lumineuse.

Mots-clés : décharges luminescentes sans mercure, mélange néon-xénon, excitation impulsionnelle, cathodes froides, rayonnement VUV, efficacité énergétique, durée de vie, enseignes lumineuses.

Studies and improvement of efficacy of mercury free fluorescent tubes for publicity lighting under pulsed electrical excitation.

This thesis presents results of research work carried out on pulsed neon xenon glow discharges to be used in replacement of mercury based signs for illuminated advertising or architectural lighting. Signs are formed by cold cathodes fluorescent tubes operating at high voltage. This distinguishes signs from common fluorescent tubes used in general lighting, which work with the same type of mixture, but at low voltage with preheated cathodes.

This work has benefited from a partnership GREMI-ADEME- Region Centre-Aupem Sefli, and is motivated by a desire to propose a mercury-free technology for lighting purposes. Indeed, mercury is a toxic element which requires the development of efficient mercury recovery programs. Some basic mechanisms of the light production have been studied and better understood. This work has also permitted to optimize characteristics of neon-xenon signs in terms of illuminance, efficacy, and lifetime. At the end of this thesis, lifetime and efficacy of cold cathodes fluorescent tubes based on neon xenon pulsed discharge lie between those of incandescent lamps and those of mercury based fluorescent tubes. Possible prospects exist for further improving the luminous efficacy.

Key-words: mercury free glow discharges, neon-xenon mixture, pulsed excitation, cold cathodes, VUV radiation, luminous efficacy, lifetime, luminous signs.

Remerciements

De nombreuses personnes se sont investies pour la bonne réalisation de cette étude.

Jean-Michel Pouvesle, directeur de cette thèse, m'a accueilli au sein de l'équipe « sources » du laboratoire GREMI. Je tiens à le remercier pour la confiance qu'il m'a accordée, ainsi que pour la qualité de son analyse scientifique. Eric Robert, co-encadrant de cette thèse, m'a fait partager ses qualités d'expérimentateur et a su m'accompagner au quotidien pour la réalisation des expériences et l'interprétation de leurs résultats. Sebastien Dozias, électronicien, s'est également fortement investi dans la conception et la maintenance des différents prototypes d'alimentations impulsionnelles. Christophe Cachoncinlle m'a quant à lui fait bénéficier de son regard un peu plus extérieur, et a su toujours me prodiguer des conseils « lumineux ». Merci également à Raymond Viladrosa et Jacky Mathias pour leur implication et leurs conseils techniques avisés.

Ma reconnaissance va aussi naturellement à Jacques Olivier Budin, qui a eu la charge du suivi de mes travaux à l'ADEME. Je le remercie vivement pour l'intérêt qu'il a porté à ce travail et le temps qu'il a consacré à l'étude de mes rapports d'avancée des recherches. Je remercie également Myriam Puaut pour son implication dans le projet.

Merci à messieurs Jean-Philippe Faure, Gerard Moussard et Nicolas Coutant, de la société Aupem Sefli, pour le temps qu'ils ont consacré au suivi de ces travaux. Remerciement spécial pour M. Victor DaCosta pour m'avoir enseigné l'art du scellement des ampoules.

J'ai eu l'occasion de faire des rencontres enrichissantes avec de nombreux chercheurs et ingénieurs au cours de ces 3 années de thèse, notamment lors de conférences scientifiques. Je tiens tout particulièrement à faire part de ma sympathie pour Phillipe Delaporte, du LP3, qui a toujours montré un vif intérêt pour mes recherches et m'a significativement orienté dans la compréhension de certains mécanismes physiques.

Je remercie vivement Sophie Rager et Marie-Hélène Gobbey, de Polytech'Orléans, pour m'avoir chaque année confié des enseignements de travaux pratiques, ce qui m'a permis d'entretenir et de développer mes connaissances. Merci à Rémi Dussart pour son soutien depuis le tout début de mes études d'ingénieur à Polytech'Orléans.

J'adresse une mention très spéciale à Sylvie Jauffrion, Christophe Dubois et Evelyne Coudert du GREMI, et à Lydia Rousselet, Eliane Jallot et Valérie Pineau pour l'ADEME, qui ont su me rendre presque invisibles les différentes formalités administratives durant ces 3 années.

Je remercie les différents stagiaires avec lesquelles j'ai eu l'occasion de collaborer, ainsi que toutes les personnes du GREMI qui ont rendu mon séjour là-bas agréable.

Je remercie également très sincèrement M. Philippe Guillot et M. Antoine Rousseau pour avoir accepté d'être rapporteurs de ces travaux de thèse, ainsi que les autres membres du jury, messieurs Fréderic Streiff, Rachid Mahiou, et Gilles Poulet.

Je tiens à remercier mes parents, famille, et amis pour leurs encouragements. Je veux enfin adresser ma plus profonde gratitude à mon épouse, Fanny, qui m'a suivi à travers la France et m'a porté, jour après jour, de son inestimable soutien.

« Je vais rendre l'électricité si peu chère que seuls les riches pourront se payer le luxe d'utiliser des bougies »

Thomas Alva Edison
1847-1931

Table des matières

I. Introduction 13
A. Contexte de l'étude 14
B. Constitution d'un tube luminescent à cathodes froides 15
1. Le mélange de gaz 15
2. Les poudres de luminophores 16
3. Les électrodes 17
C. Principe de fonctionnement 18
D. Problèmes et solutions potentielles 19
1. Le mercure 19
2. Diodes Electro-luminescentes (DEL) : Intérêts et inconvénients 20
3. Technologie Plasma 21
E. Conclusion du chapitre 26
II. Dispositif expérimental 27
A. Banc expérimental 28
1. L'enseigne 30
2. Le circuit de gaz 32
3. Instrumentation optique 34
4. Prototype d'alimentation impulsionnelle 39
B. Autres Instruments 42
III. Production du rayonnement 44
A. Mesures électriques 45
B. Production du rayonnement VUV 46
1. Au cours de l'impulsion 46
2. Post-décharge 51
C. Conclusion du chapitre 59
IV. Etudes paramétriques 60
A. Evolution des propriétés radiatives avec la pression 61
1. Influence de la pression partielle de néon 61
2. Influence de la pression partielle de xénon 62
3. Etude d'un mélange 99%néon-1%xénon 63
4. Conclusion partielle 80
B. Etude de l'excitation électrique 81
1. Influence de la valeur de fréquence 81
2. Influence de la durée d'impulsion 86
3. Amélioration des performances de GECOPULSE 92
4. Conclusion partielle 97
C. Etude du vieillissement 98
1. Facteurs limitants 98
2. Expériences à basse pression 99
3. Expériences à pression intermédiaire 102
4. Conclusion partielle 104
D. Conclusion du chapitre 105
V. Synthèse et perspectives 106
VI. Bibliographie 110
Annexes 114
A. Décrets 115
B. Caractéristiques enseigne verte Aupem Sefli 120
C. Excitation par train d'impulsions 121
D. Décharge dans le xénon avec électrode externe 122

Table des illustrations

Figure 1: schéma d'une électrode cylindrique creuse (source: Aupem Sefli)..... 17
Figure 2: a) évolution schématique du champ électrique le long de l'espace inter-électrode (adapté de Brai_2000) b) structure de la décharge luminescente normale le long de l'espace interélectrode…….18
Figure 3: feuille de route des DEL. Source: Optoelectronics Industry Development Association (www.oida.org). 21
Figure 4: spectre VUV du xénon au premier et au second ordre. Réponse non calibrée en longueur d'onde……23
Figure 5: flux VUV et IR moyens en régime sinusoïdal selon la puissance appliquée aux bornes. Mélange Penning 10 mbar Ne-Xe (1% de xénon)……...24
Figure 6: diagramme des niveaux d'énergie du xénon (source : [Gor_2003]). Les processus considérés sont : l'ionisation par collision électronique(1), l'excitation et la désexcitation par collision électronique (2), le quenching (3) et les transitions radiatives (4) ……...…24
Figure 7: allure de l'émission VUV (147 nm) sous excitation pulsée à faible rapport cyclique. Mélange néon-xénon à 10 mbar. 1 % de xénon…… 25
Figure 8: amélioration de l'éclairement due à l'utilisation d'un signal pulsé à faible rapport cyclique. Mélange néon-xénon. Pression de mélange : 10 mbar. 1% de xénon……..…...25
Figure 9: schéma global du banc expérimental. 29
Figure 10: opération de scellement d'enseigne. 30
Figure 11 : ampoule expérimentale en « T » typique. 30
Figure 12: photographie d'une électrode creuse. 31
Figure 13: spectre d'excitation et d'émission de la poudre utilisée dans cette étude. Données fournisseur OSRAM. 32
Figure 14: tableau de commande du bâti de pompage. 33
Figure 15: spectromètre principal de 40 cm de focale. 34
Figure 16: épaisseur de gaz froid entre le plasma et le hublot d'entrée du spectromètre (environ 50 cm)…….... 35
Figure 17: Schéma de principe de la visée sous vide. 36
Figure 18: photographie de la visée placée dans le plan du luminophore. 36
Figure 19: schéma représentant le petit élément de plasma observable par la visée, et l'ouverture géométrique de celle-ci……..... 37
Figure 20: tube photomultiplicateur monté sur le hublot MgF2 38
Figure 21: profil temporel de l'émission centrée sur 147 nm. L'aire sous la courbe, calculée en intégrant le signal dans le temps, donne une image, en mV.s, de la quantité de lumière (ici à 147 nm) émise…….. 38
Figure 22: schéma bloc du dispositif d'alimentation impulsionnelle. 40
Figure 23: face avant de Gecopulse et de l'alimentation continue externe (Fug MCN 350-1250)..... 40
Figure 24: Photographie d'une version portable de Gecopulse, utilisée en vieillissement. 40
Figure 25: étage de commande (a) et étage de puissance (b) de l'alimentation impulsionnelle. 41
Figure 26: allure du signal d'excitation impulsionnel. 42
Figure 27: à gauche, photographie de la sphère intégratrice. A droite, photographie du luxmètre à main à appliquer sur l'enseigne…….. 43

Figure 28: courbe permettant de relier les valeurs mesurées à la sphère (en lm) avec les mesures réalisées au luxmètre (en lux)**.** 43
Figure 29: allure de courant-tension d'une décharge dans un mélange Ne-Xe (50 mbar, 1% de xénon) sous excitation impulsionnelle (5µs, 1.5 kHz)**.** 45
Figure 30: allure du courant et des rayonnements VUV, Visible et IR du xénon. Décharge 50 mbar 99% néon- 1% xénon. Durée d'impulsion : 5µs. Fréquence : 1.2kHz.Tension appliquée : 1 kV. 47
Figure 31: Emission à 640.2 nm (par le néon neutre) et émission 529.1 nm (par l'ion xénon). Décharge 50 mbar 99% néon- 1% xénon. Durée d'impulsion : 5µs. Fréquence : 1.2kHz. Tension appliquée : 1 kV…… 48
Figure 32: diagramme d'énergie du xénon et du néon [Uch_1999]. Flèches pleines : excitation par collision électronique. Flèches discontinues : transition radiative…….. 49
Figure 33: sections efficaces de collision électrons-atomes pour le xénon [Hir_1997]. [1] transfert de quantité de mouvement, [2] excitation $^3P_2$, [3] excitation $^3P_1$, [4] excitation Xe**, [5] excitation Xe***, [6] ionisation directe, [7] et [8] ionisation à partir des niveaux $^3P_2$ et Xe**. 50
Figure 34: sections efficaces de collision électrons-atomes pour le néon [Hir_1997]. [1] transfert de quantité de mouvement, [2] excitation des niveaux $^3P_{2,0}$, [3] excitation de la somme des autres niveaux, [4] ionisation directe, [5] ionisation à partir des niveaux métastables. 50
Figure 35: émission lumineuse post-décharge en fonction du temps pour 3 longueurs d'ondes. Réponse normée sur le maximum atteint pendant la décharge. Décharge 99% néon-1% xénon. Pression de mélange : 50mbar. Durée d'impulsion : 5µs. Fréquence : 1.2kHz. Tension appliquée : 1 kV. 51
Figure 36: courbes arbitraires d'évolution de la température électronique post-décharge pour une valeur initiale de 1 eV et une valeur initiale de 0.5 eV. 56
Figure 37: évolution de la densité de Xe(1s4) dans le temps comparée à l'évolution du flux VUV expérimental (décharge 99% néon-1% xénon à 50 mbar, durée d'impulsion : 5µs) à 147 nm……..58
Figure 38: évolution de la densité de Xe(1s4) en prenant en compte la recombinaison dissociative seule ou ajoutée à la recombinaison collisionnelle radiative…….. ... 58
Figure 39: flux VUV dans le cas d'une décharge pulsée en xénon pur et en mélange néon-xénon. Durée d'impulsion : 2µs. Puissance prise : 65 W. Tension appliquée : 1 kV……..61
Figure 40: évolution de la quantité de lumière VUV selon la pression partielle de néon dans le cas d'une décharge néon-xénon pulsée contenant 1mbar de xénon. Durée d'impulsion : 2µs. Puissance prise : 65 W. Tension appliquée : 1 kV. 62
Figure 41: réponse du luminophore en fonction de la proportion de xénon dans le mélange néon-xénon et de la pression totale. Spectromètre à fibre. Tension : 1kV. Puissance prise : 45 W…… 63
Figure 42: courbes de potentiels semi-qualitatives dans le cas de dimères de gaz neutres (source :[Tis_1995])……..65
Figure 43: spectre de la décharge pulsée dans un mélange 99% néon-1% xénon sur la plage 110-200 nm. Pression de mélange : 50 mbar…….. 66
Figure 44: allure spectrale de la raie centrée sur 147 nm en fonction de la pression du mélange 99% néon -1% xénon. Mesure avec visée dans le plan du luminophore…….. 67
Figure 45: estimation du pourcentage du rayonnement atomique (provenant de la désexcitation de Xe (1s4)) et du rayonnement moléculaire (transitions au sein de NeXe*) dans le flux VUV enregistré vers 147 nm selon la pression du mélange 99% néon -1% xénon 68

Figure 46: quantité de lumière VUV de décharge et de post-décharge en fonction de la pression totale pour un mélange 99% néon- 1% xénon. Mesure avec visée dans le plan du luminophore. Comparaison avec l'évolution de la population de Xe (1s4) post-décharge fournie par le modèle. Durée d'impulsion : 2µs. Puissance prise : 65W. Tension appliquée : 1 kV…… .69
Figure 47: évolution du flux émis par le luminophore et du flux VUV enregistré au niveau .. du luminophore par la visée, en fonction de la pression de mélange. Duré d'impulsion : 2µs. Puissance prise : 65W. Tension appliquée : 1 kV……70
Figure 48: montage CCD permettant la mesure de la contraction de la décharge luminescente de néon-xénon. 71
Figure 49: illustration de l'évolution du profil radial de l'intensité lumineuse émise par la colonne positive de la décharge 99% neon – 1% xenon pour 3 pressions de mélange. Tension appliquée : 1 kV. Puissance appliquée à l'enseigne constante : 20 W……..71
Figure 50: évolution de R en fonction de la pression de mélange. Puissance appliquée à l'enseigne constante : 20 W……..72
Figure 51: schéma illustrant la surface observée par la visée sur un cylindre (correspondant à une section de colonne positive) de diamètre 2R et de hauteur 2a. 73
Figure 52: évolution du flux VUV corrigé de la contraction de la colonne positive comparé à la réponse du luminophore. Durée d'impulsion : 2µs. Tension appliquée : 1kV…….. 74
Figure 53: Eclairement en fonction de la pression dans un tube de 9 mm de diamètre interne et dans un tube de 13 mm de diamètre interne. Décharge 99% néon-1 % xénon en flux. Puissance prise : 45W. Tension appliquée : 1 kV…… 75
Figure 54: efficacité lumineuse en fonction de la puissance appliquée aux bornes pour 3 tubes de pressions différentes…… 76
Figure 55: interface logiciel de la sphère intégratrice. Le spectre affiché est celui d'un tube scellé (99% néon 1% xénon) à 60 mbar. Puissance appliquée aux bornes: 12W. ……...77
Figure 56: mesure dans la sphère intégratrice de la puissance optique enregistrée totale et en fonction de la plage de longueur d'onde selon la puissance électrique appliquée. Durée d'impulsion : 2µs. Tension appliquée : 1kV. L'augmentation de la puissance électrique est obtenue par élévation de la valeur de fréquence…… .. 78
Figure 57: mesures de températures au thermocouple en fonction de la puissance injectéel'enseigne, au niveau de l'électrode et à 20 cm de l'électrode. Durée d'impulsion : 2µs. Tension appliquée : 1 kV. L'augmentation de puissance électrique est obtenue par élévation de la valeur defréquence……....79
Figure 58: courbe de transmission du pyrex (source: valley design corporation)..... 80
Figure 59: allure de l'impulsion de courant selon la fréquence d'excitation. Durée d'impulsion : 5µs. Tube 99% neon-1% xénon à 45 mbar. Tension appliquée : 1kV…… .. 82
Figure 60 : valeur de la tension minimum aux bornes du tube en fonction de la pression de mélange. La tension retenue est celle affichée par l'alimentation continue, multipliée par le coefficient de transformation nominal du transformateur de sortie…….. 83
Figure 61: croquis et photographie correspondante de la zone observée en sortie d'électrode. Pulse : 5µs, 1.5 kHz..... 84
Figure 62: allure a) de la luminosité du plasma en sortie d'électrode et b) de l'impulsion de tension selon la fréquence…….85
Figure 63: fréquence nécessaire à la conservation d'une puissance prise de 60W selon la durée d'impulsion. Décharge néon-xénon (1% de xénon) à 40mbar en flux. 86
Figure 64: allure des impulsions de courant en fonction des valeurs prises par le couple durée d'impulsion-fréquence. Décharge néon-xénon (1% de xénon) à 40mbar en flux. Puissance prise : 60W. 87

Figure 65: quantité de charges produite au cours d'une impulsion en fonction de la durée d'impulsion. Décharge néon-xénon (1% de xénon) à 40mbar en flux. La quantité de charge est obtenue en intégrant le courant sur la durée d'impulsion. Puissance prise : 60W. ……...87
Figure 66: illustration de l'influence potentielle de la densité de l'ion de xénon pour le peuplement de Xe(1s4) post-décharge. Densité initiale de Xe(1s4) fixée à ~1E+10 cm^{-3} 89
Figure 67: spectroscopie résolue en temps de la raie à 147 nm du xénon. Décharge néon-xénon (1% de xénon) à 40mbar en flux. 89
Figure 68: illustration de l'allure de la décharge pour le couples de valeurs (2µs; 4900 Hz) et(21 µs; 244Hz). Puissance prise : 60W. Décharge néon-xénon (1% de xénon) à 40mbar en flux…….....…90
Figure 69: quantité de lumière VUV émise sur une alternance (décharge et post-décharge) et flux VUV moyen en fonction de la durée d'impulsion. Puissance prise : 60 W. Décharge néon-xénon (1% de xénon) à 40mbar en flux. 91
Figure 70: évolution typique de l'éclairement produit par une décharge néon-xénon en fonction de la durée d'impulsion, à puissance prise constante: 55W. Enseigne scellée néon-xénon (1% de xénon) à 45 mbar……... 91
Figure 71: distribution de la puissance électrique à différents niveaux du dispositif expérimental selon la fréquence. Enseigne scellée néon-xénon (1% de xénon) à 45mbar…. 92
Figure 72: allure typique d'une impulsion a) de tension b) de courant fournis par Gecopulse sans transformateur de sortie. Tube scellé néon-xénon (1% de xénon) à 45mbar. 94
Figure 73: évolution temporelle de quelques raies du xénon et du néon sans transformateur de sortie sur Gecopulse. 95
Figure 74: distribution de puissance électrique à différents niveaux du dispositif expérimental selon la fréquence. Tube scellé néon-xénon (1% de xénon) à 45mbar…….. 96
Figure 75: allure de l'éclairement selon durée d'impulsion lorsque l'excitation pulsée kV est fournie directement par Gecopulse sans transformateur de sortie. Tension appliquée : 1kV. Puissance prise: 55W. Enseigne scellée néon-xénon (1% de xénon) à 45 mbar. 96
Figure 76: flux de particules pulvérisées pour deux mélanges (néon-argon et néon-xénon) en fonction du pourcentage du gaz lourd. Source [Cap_2001]……..99
Figure 77: dépôt métallique entourant l'électrode d'une enseigne basse pression (10mbar) après 500 heures de fonctionnement. Comparaison avec une électrode neuve……...……100
Figure 78: valeur d'éclairement en fonction du temps pour deux mélanges néon-xénon à 10 mbar contenant respectivement 10 et 30 % de xénon ……101
Figure 79: coordonnée x en fonction du temps pour deux mélanges néon-xénon à 10 mbar contenant respectivement 10 et 30 % de xénon…….. ... 101
Figure 80: coordonnée y en fonction du temps pour deux mélanges néon-xénon à 10 mbar contenant respectivement 10 et 30 % de xénon…… 102
Figure 81: valeur d'éclairement en fonction du temps pour un mélange néon-xénon à 50 mbar contenant 5% de xénon…… . 103
Figure 82: coordonnées x et y en fonction du temps pour un mélange néon-xénon à 50 mbar contenant 5% de xénon…… .. 103
Figure 83: efficacité d'un tube néon-xénon à 60 mbar comparée à l'efficacité d'un tube Ar/Ne/Hg classique selon la puissance appliquée aux bornes…… 105
Figure 84: spectre d'excitation et d'émission du CeMgAl11O19 :Tb (donnée OSRAM).... 109

Table des tableaux

Tableau 1 : proportion des gaz rares dans les enseignes courantes (source : Aupem Sefli) .. 15
Tableau 2: exemples de quelques luminophores et domaine d'émission correspondant**.** 16
Tableau 3: coefficients d'émission secondaire de plusieurs couples gaz-électrode dans les enseignes à cathodes froides planes (source : [Cap_2001]). γ(Fe +BaF2) et γ (Fe*)* correspondent respectivement aux valeurs mesurées avec une électrode activée et avec une électrode sans activation……...22
Tableau 4: principales réactions entrant en jeu dans le repeuplement de Xe ($1s_4$)……..54
Tableau 5 : densités initiales choisies pour les espèces intervenant dans le modèle selon la température initiale……...57
Tableau 6: coordonnées chromatiques (+-0.005) en fonction de la pression partielle de xénon. Pression de mélange : 30 mbar…….62
Tableau 7 : tableau comparatif des performances d'une lampe seule et d'un ensemble de lampes pour une puissance totale consommée identique. Tube 60 mbar…….77

I. Introduction

Ce chapitre fixe le contexte des recherches, en faisant le point sur les avantages et les problèmes liés à la technologie actuelle des tubes luminescents à base de mercure, et en présentant les potentialités des décharges néon-xénon pour les applications d'enseignes lumineuses publicitaires ou architecturales.

A. Contexte de l'étude

Bien que les sources de production de mercure soient principalement les activités d'extraction minières de métaux et de combustibles fossiles, l'incinération ou l'enfouissement de déchets contenant du mercure (lampes fluocompacts, tubes « néon », thermomètres au mercure) participent également à la pollution de la planète par le mercure. Les conséquences sanitaires de cette pollution au mercure peuvent être importantes. En zone aquifère, les microorganismes provoquent en effet la methylation du mercure qui devient monomethylmercure (CH_3Hg^+). Bioaccumulable, ce cation moléculaire remonte la chaîne alimentaire jusqu'à l'homme. A titre d'exemple, des concentrations anormalement élevées de monomethylmercure ont été mesurées chez des populations nordiques vivant essentiellement des fruits de la pêche en mer. Capable de traverser les barrières placentaires et hémato-encéphaliques, le methylmercure peut provoquer de graves dommages sanitaires, notamment pour le développement cérébral des fœtus. Conscient de ce problème, le législateur européen, dans le cadre de la norme RoHS, limite la quantité de mercure présent dans les équipements électriques. Par ailleurs, la norme DEEE règlemente la fin de vie des déchets électroniques et organise le recyclage des métaux lourds (voir Annexe A pour la transposition des textes en loi française). En France, d'après l'éco-organisme recylum (http://www.recylum.com) il s'est vendu, en 2006, 96 millions de lampes fluorescentes contenant du mercure. C'est dans ce contexte que le GREMI (Groupe de Recherche sur l'Energétique des Milieux Ionisés), unité mixte CNRS/Université d'Orléans, a travaillé à l'élaboration d'une solution technique pour remplacer les enseignes luminescentes actuelles utilisées notamment dans la signalisation publicitaire et l'éclairage architectural. En effet, ces tubes luminescents à cathodes froides, improprement dénommés tubes « néon », renferment un mélange d'argon, de néon et de mercure, lequel émet lorsque la décharge est établie un rayonnement ultraviolet intense, capable d'exciter les poudres de luminophores déposées sur la face interne des tubes. Ces poudres, constituées de terres rares, émettent en se désexcitant une lumière visible, dont la couleur dépend de la chimie exacte de la poudre. Les décharges dans le mercure sont l'un des moyens les plus efficaces de conversion de l'énergie électrique en énergie lumineuse. Eliminer le mercure du processus de fonctionnement de ces enseignes suppose donc de trouver un autre moyen d'émettre intensément un rayonnement ultraviolet, avec un impact moindre sur l'environnement. L'alternative étudiée au GREMI repose sur l'utilisation d'un mélange de gaz neutres néon-xénon excité par une tension électrique impulsionnelle à faible rapport cyclique. Cette thèse de doctorat a eu pour objectif l'amélioration de l'efficacité énergétique de telles décharges. Cette amélioration est passée par la compréhension du fonctionnement des décharges de néon-xénon sous le régime impulsionnel, et des processus de conversion de l'énergie électrique en énergie lumineuse, ainsi que par l'optimisation des paramètres physiques du milieu plasmagène (proportion des gaz neutres, pression de mélange) et des paramètres de l'excitation électrique (fréquence d'excitation, durée d'impulsion). La thèse a été réalisée au sein du ***Groupe de Recherche sur l'Energétique des Milieux Ionisés*** (GREMI), et plus précisément dans l'équipe « Sources ». L'***Agence de l'Environnement et de la Maîtrise de l'Energie*** (ADEME) a participé à l'encadrement de ces recherches, et au co-financement avec la ***Région Centre*** de l'allocation de recherche. Ces travaux s'inscrivaient dans la thématique de *prévention de la production de déchets* de l'agence. Ces travaux ont été réalisés avec le soutien d'un partenaire industriel, ***Aupem-Sefli***, société française spécialisée dans la conception et la fabrication des composants nécessaires à la réalisation d'enseignes lumineuses. Les enseignes utilisées dans cette étude, ainsi que le bâti de bombardement permettant leur mise en forme, provenaient de cette société.

Le ***présent chapitre*** de ce mémoire de thèse se concentre sur la constitution et le fonctionnement des décharges luminescentes basées sur les mélanges gaz rares/mercure. Le problème lié à l'utilisation du mercure sera posé dans ce chapitre, ainsi que les potentialités des décharges en gaz rares sans mercure. Le choix d'étudier les décharges pulsées de néon-xénon y sera en outre justifié. Le ***deuxième chapitre*** décrit ensuite les différents éléments du dispositif expérimental utilisés pour la génération et le diagnostic des décharges étudiées au cours de la thèse. Le ***troisième chapitre*** doit permettre de comprendre les grandes lignes de la cinétique réactionnelle gouvernant les processus radiatifs ayant lieu dans la décharge néon-xénon pulsée et permettant la conversion de l'énergie électrique en énergie lumineuse. Le ***quatrième chapitre*** de ce mémoire présente les résultats des études paramétriques menées sur les décharges pulsées de néon-xénon dans des enseignes fluorescentes. Les propriétés radiatives et l'efficacité lumineuse seront discutées en fonction des spécificités du mélange et des caractéristiques de l'excitation électrique. Des études de vieillissement seront également décrites. Le ***cinquième chapitre*** conclura ces travaux de thèse par un bilan et tentera de proposer quelques pistes qui permettraient d'améliorer encore l'efficacité énergétique des décharges luminescentes pulsées en néon-xénon.

B. Constitution d'un tube luminescent à cathodes froides

On se propose de présenter une description d'un tube luminescent à cathodes froides. Ce dispositif est utilisé pour la réalisation d'enseignes lumineuses publicitaires ou architecturales, généralement pour des applications extérieures. Ces tubes fluorescents fonctionnent à Haute Tension avec des cathodes froides, ce qui les distingue des tubes fluorescents utilisés pour l'éclairage. Ces derniers fonctionnent en effet à basse tension (tension du secteur) avec des électrodes dites chaudes qui nécessitent un préchauffage.

Typiquement, un tube fluorescent à cathodes froides est constitué d'une ampoule linéique en verre de silice (généralement du borosilicate). Cette ampoule est intérieurement recouverte de poudre fluorescente sensible aux UV. L'ampoule linéique est munie d'une électrode creuse à chacune de ses extrémités. Elle renferme des gaz rares et contient du mercure. Le rôle du mercure est d'émettre le rayonnement UV. Ces éléments sont décrits individuellement dans les sections suivantes.

1. Le mélange de gaz

Un tube luminescent à cathodes froides renferme un mélange de gaz rares à basse pression (autour de 10 mbar). Les gaz rares, quand ils sont excités, émettent un rayonnement visible, mais on les utilise en pratique seulement comme support à l'établissement de la décharge, exception faite des décharges en néon pur (qui émettent une couleur rouge appréciée). Les proportions typiquement utilisées par les constructeurs sont données dans le tableau 1.

Tableau 1 : proportion des gaz rares dans les enseignes courantes (source : Aupem Sefli)

Néon (%)	Argon (%)	Applications :
25	75	**Enseignes lumineuses**
50	50	**Enseignes lumineuses avec électrodes activées (BaF_2)**

Le mercure est présent dans le tube sous 2 formes : vapeur et liquide. La pression de vapeur saturante, pour laquelle le mercure coexiste sous ces deux formes, est dépendante de la température du milieu. Par temps froid, une condensation excessive du mercure entraîne des difficultés d'allumage. La masse de mercure en forme vapeur nécessaire au fonctionnement du tube est faible, de l'ordre de quelques dizaines de microgrammes [Dun_2003]. Cependant, au cours du fonctionnement du tube, une certaine quantité de mercure s'adsorbe à la poudre. On estime qu'en fin de vie, 99% du mercure [Flo_2002] est adsorbé par la poudre sous forme divalente. Ainsi, initialement, les constructeurs introduisent environ 10 mg de mercure dans le tube afin d'assurer une durée de vie suffisante.

2. Les poudres de luminophores

Les décharges en gaz rares émettent de la lumière. Cependant, les couleurs du spectre ainsi obtenues sont limitées :

Néon : rouge
Xénon : bleu violet
Argon : bleu pâle
Hélium : rose
Krypton: rose pâle

Afin de couvrir une large palette de couleurs, les fabricants utilisent des luminophores sensibles aux UV [Sri_2003]. Chaque chimie de luminophore émettant un spectre particulier, l'association en bonne proportion de différents luminophore permet d'obtenir la couleur souhaitée, et notamment du blanc (cas des poudres triphosphores). Une liste non exhaustive des luminophores fréquemment retrouvés dans les tubes luminescents à cathodes froides est donnée dans le tableau 2.

Tableau 2: exemples de quelques luminophores et domaine d'émission correspondant.

Composition (**dénomination internationale**)	Zone d'excitation	Domaine d'émission
Aluminate de Baryum Magnésium activé à l'Europium (**BAM**)	**UV**	Dans le bleu
Aluminate de Cérium Magnésium activé au Terbium (**CAT**)		Dans le vert
Silicate de Zinc activé au Manganèse (**S15**)		Dans le vert
Fluorogermanate de Magnésium activé au Manganèse (**SV 067**)		Dans le rouge profond
Aluminate d'Yttrium activé au Cérium (**L175**)		Dans le jaune

Tous ces luminophores sont par nécessité les moins réactifs possible avec le mercure afin d'éviter la modification de leur propriétés chimiques. La persistance de la luminescence est de l'ordre de la ms ou de la dizaine de ms. Enfin, le rendement à 254 nm (raie du mercure) de ces luminophores (quantité de lumière UV absorbée / quantité de lumière visible émise) avoisine fréquemment les 70 ou 80%. L'écart en longueur d'onde entre la lumière UV excitant le luminophore et la lumière émise dans le visible engendre des pertes d'énergie dites pertes Stokes [Kit_2004] sur lesquelles nous reviendrons. L'effet Stokes est une barrière physique à l'obtention d'un rendement de 100%.

3. Les électrodes

Les électrodes sont dites froides car l'émission d'électrons se fait par bombardement ionique, et non par thermo-émission (chauffage des électrodes) comme c'est le cas dans les applications basse tension. Il existe des exigences sur la nature des électrodes. Le métal constitutif doit être pur, et ne pas réagir avec le mercure. Le fer pur, qui n'amalgame pas le mercure, est majoritairement employé dans la fabrication des électrodes. Pour éviter la formation d'oxyde de fer, les électrodes sont recouvertes de nickel, qui n'amalgame pas non plus le mercure. L'intérieur des électrodes est recouvert d'une couche active, afin d'abaisser le travail de sortie (le travail de sortie est le niveau d'énergie minimal pour arracher un électron de la couche de Fermi ; le travail de sortie pour le Fer pur est de 4,4 eV). Les substances actives les plus utilisées sont des alcalino-terreux réduits en oxydes par traitement thermique du tube lors de la fabrication. Le phénomène de pulvérisation des électrodes - soumises au bombardement des ions de gaz rares et de mercure - intervient considérablement dans la durée de vie d'un tube. La figure 1 présente un schéma détaillé des électrodes utilisées.

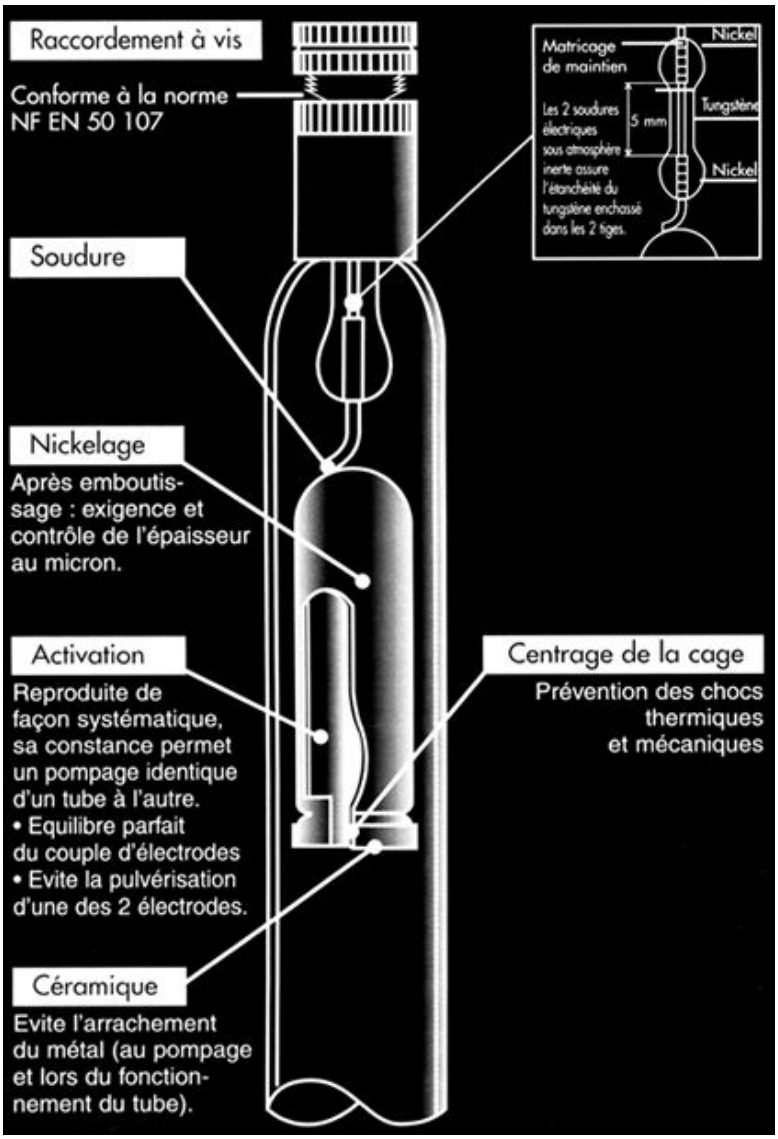


Figure 1: schéma d'une électrode cylindrique creuse (source: Aupem Sefli).

C. Principe de fonctionnement

Les tubes luminescents à cathodes froides fonctionnent à partir de décharges luminescentes normales, dont la physique a été largement étudiée et qui sont bien connues [Rai_1991], [Poi_1998], [Lis_2004]. A la mise sous tension du tube, les électrons naturellement libres dans le milieu (électrons germes) sont accélérés vers l'anode et acquièrent une énergie suffisante pour exciter et ioniser les atomes, ce qui permet d'augmenter la densité d'électrons. Le nombre de nouveaux électrons crées via ce processus à partir d'un électron initialement près de la cathode s'écrit $\exp(\alpha \times d) - 1$, avec α premier coefficient de Townsend et d la distance inter-électrodes. La succession des collisions issues d'un unique électron germe de départ est appelée avalanche électronique. Suite à la croissance de nombreuses avalanches électroniques se met en place l'émission secondaire. Ceci consiste en une émission d'électrons au niveau de la cathode, sous l'action du bombardement ionique. Si chaque avalanche produit, au niveau de la cathode, un électron secondaire, ce qui se traduit par l'expression $\gamma.(\exp(\alpha \times d) - 1) = 1$, avec γ second coefficient de Townsend, alors la condition d'auto-entretien de la décharge est remplie. La décharge auto-entretenue ainsi créée se structure le long de l'espace inter-électrode avec des zones radiatives et des zones plus sombres auxquelles correspondent différentes valeurs du champ électrique (figure 2 a) et b)).

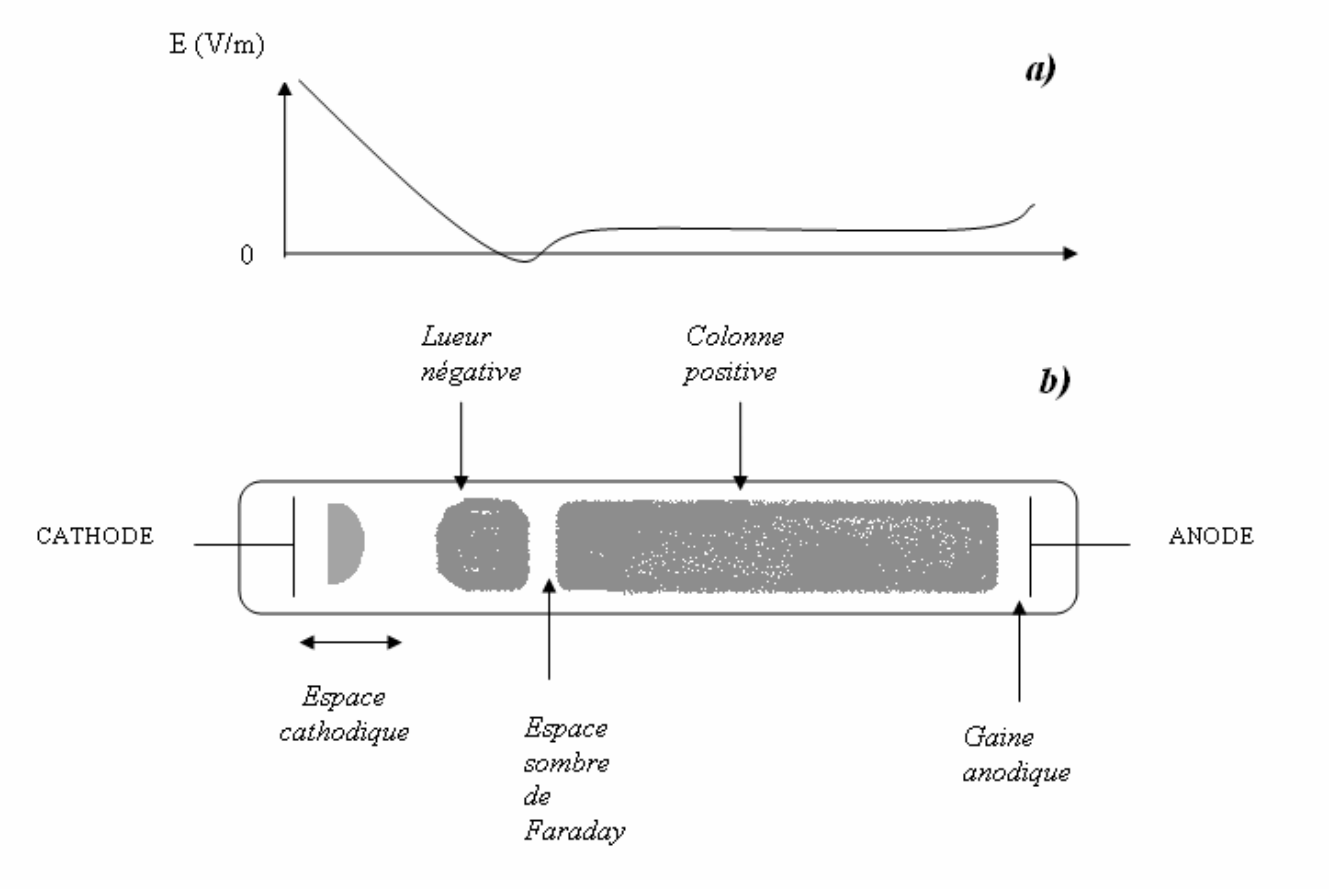


Figure 2: a) évolution schématique du champ électrique le long de l'espace inter-électrode (adapté de Brai_2000) b) structure de la décharge luminescente normale le long de l'espace inter-électrode.

L'*espace cathodique* est une zone essentielle de la décharge. C'est une zone de charge d'espace pauvre en électrons mais dense en ions positifs. Peu lumineuse, il y règne un champ électrique élevé et décroissant linéairement, qui accélère très fortement les électrons secondaires émis par la cathode. Les électrons accélérés excitent et ionisent le gaz de la zone adjacente : c'est la *lueur négative*, zone très lumineuse caractérisée par un champ électrique quasi nul. Dans la géométrie d'électrodes cylindriques creuses, la lueur négative est contenue à l'intérieur de la cathode. Les électrons, après cette phase d'excitations et d'ionisations collisionnelles, conservent très peu d'énergie cinétique. L'existence d'un champ électrique de l'ordre du $V.cm^{-1}$ permet cependant de conduire les charges le long d'une zone appelée *espace sombre de Faraday* jusqu'à la *colonne positive,* qui est à proprement parler un plasma dans lequel règne une quasi neutralité électrique et un champ électrique typiquement de l'ordre du $V.cm^{-1}$. Les électrons excitent et ionisent le gaz par collision, ce qui compense la diffusion ambipolaire, et entretient la décharge. La colonne positive occupe l'essentiel de la longueur d'un tube. La diminution de la longueur du tube réduit celle de la colonne positive, mais ceci n'a aucune incidence sur le fonctionnement de la décharge tant que cette longueur reste supérieure à celle de l'espace cathodique. Finalement, les électrons sont collectés par l'anode après la traversée de la *gaine anodique*.

Dans la colonne positive, les atomes de mercure, excités par collisions électroniques, se désexcitent en émettant notamment un rayonnement ultraviolet à 254 nm très intense qui excite les luminophores. Ces luminophores se désexcitent à leur tour en émettant dans le visible.

D. Problèmes et solutions potentielles

1. Le mercure

Les tubes fluorescents à cathodes froides, comme les lampes fluocompactes et les tubes fluorescents à cathodes chaudes, fonctionnent sur la base d'un plasma de gaz rares et de mercure. Or, le mercure est un élément toxique. Le degré de toxicité dépend de la forme chimique qu'il prend. En particulier, le methylmercure ($CH_3H_g^+$), formé par les organismes marins à partir de mercure atomique, est une substance bioaccumulable, qui parvient à l'homme en remontant la chaîne alimentaire aquatique. Capable de traverser les filtres biologiques comme la barrière hémato-encéphalique, censée épurer le sang avant la traversée du cortex cérébral, le monométhylmercure est un neurotoxique puissant. Capable également de traverser la barrière placentaire, le monomethylmercure accumulé dans les organes des fœtus est un facteur de risque d'avortement spontané.

Les sources principales de production de mercure sont les activités minières d'extraction de métaux et la combustion de produits fossiles (charbon notamment). Cependant, l'augmentation des déchets d'équipements électriques contenant des métaux lourds, et notamment le mercure, ont conduit le législateur européen à développer des outils juridiques adaptés afin de limiter leur impact environnemental. La norme RoHS (Reduction of certain Hazardous Substances) oblige ainsi notamment les fabricants de lampes à décharge à diminuer la quantité de mercure utilisée. Ainsi, en 1993, la quantité de mercure introduite dans les tubes fluorescents à cathodes chaudes était de 30 ou 40 mg [Flo_2002]. Elle doit être inférieure à 10 mg aujourd'hui. La norme DEEE oblige quant à elle la récupération et la valorisation des Déchet d'Equipement Electriques et Electroniques dont le mercure fait partie.

La récupération des tubes fluorescents, qui sont majoritairement employés dans les secteurs d'activités professionnels comme l'industrie ou le tertiaire, est aujourd'hui réalisée efficacement. Cependant, il n'en va pas de même des lampes fluocompactes qui ont fortement gagné le marché domestique et dont la collecte est plus difficile à réaliser [Dun_2003].

Dans ce contexte, de nombreux efforts sont consentis dans le domaine des sources d'éclairage afin de trouver une alternative écologique et économiquement viable aux décharges dans le mercure. On pourra consulter les références [J.Phys.D_2007] et [LS_2007] pour avoir un panorama de ces recherches

2. Diodes Electro-luminescentes (DEL) : Intérêts et inconvénients

Les sources de lumière à base de DEL ([Zis_2007], [Ecr_2007]) apparaissent comme une technologie prometteuse pour de nombreuses applications d'éclairage ou de signalisation lumineuse. Elles fonctionnent sur la recombinaison de charges au sein d'une jonction à semi-conducteur. Depuis 40 ans, les performances lumineuses des DEL sont en constante amélioration, et font encore aujourd'hui l'objet de nombreuses avancées ([Kra_2007], [Tag_2007]). Une feuille de route (figure 3), mise au point en 2002 et bien tenue jusqu'à présent, prévoit la pénétration des différents marchés de l'éclairage par les DEL. Ces prévisions estiment une pénétration de l'ensemble des marchés pour 2020. Pour autant, il n'est pas certain que les DEL soient capables de remplacer toutes les autres technologies. On voit par exemple, d'après la feuille de route, que la puissance électrique par DEL est aujourd'hui limitée, essentiellement pour des problèmes de dissipation de la puissance électrique. Ainsi, malgré une très bonne efficacité, une DEL ne peut fournir le flux obtenu grâce à un tube fluorescent. Une alternative existe dans l'association de plusieurs DEL dans un même luminaire, à la manière des feux de signalisation routière à diodes. Cependant, pour l'éclairage domestique ou architectural, ceci pose des questions quant au confort visuel de l'utilisateur. De la même manière, la température de couleur très froide des DEL blanches peut être une source de désagrément pour l'être humain. La directivité du flux lumineux des DEL pose aussi des problèmes d'éblouissement.

Ainsi, malgré les avancées très importantes des DEL du point de vue de l'efficacité, certaines de leurs caractéristiques (taille de la source, température de couleur, puissance maximale, directivité du flux) rendent nécessaire le développement de technologies écologiques concurrentes aux caractéristiques variées et complémentaires.

Technology	SSL-LED 2002	SSL-LED 2007	SSL-LED 2012	SSL-LED 2020	Incandescent	Fluorescent
Luminous efficacy (lm/W)	25	75	150	200	16	85
Lifetime (kh)	20	>20	>100	>100	1	10
Flux (lm/lamp)	25	200	1,000	1,500	1,200	3,400
Input power (W/lamp)	1	2.7	6.7	7.5	75	40
Lumens cost ($/klm)	200	20	<5	<2	0.4	1.5
Lamp cost ($/lamp)	5	4	<5	<3	0.5	5
Colour rendering index (CRI)	75	80	>80	>80	95	75
Lighting markets penetrated	Low-flux	Incandescent	Fluorescent	All		

Figure 3: feuille de route des DEL. Source: Optoelectronics Industry Development Association (www.oida.org).

3. Technologie Plasma

a) Intérêt

De nombreuses études sont menées afin de mettre au point des sources de lumière basées sur un plasma de gaz rares, dans le but de remplacer les décharges au mercure. Citons par exemple les références suivantes : [Uhr_2005], [Bus_2006], [Jin_2007], [Bel_2008]. Dans ces travaux, le xénon est généralement privilégié comme source d'émission VUV pour l'excitation des luminophores. Au GREMI, nous nous sommes intéressés plus particulièrement aux applications d'enseignes lumineuses publicitaires ou destinées à la mise en lumière architecturale. Une enseigne est constituée d'un tube fluorescent à cathodes froides creuses fonctionnant à Haute Tension. Ceci la distingue d'un tube fluorescent d'éclairage (linéique ou compact), qui fonctionne à basse tension avec des cathodes chaudes. La technologie basée sur un plasma sans mercure permettrait de répondre aux nouvelles exigences environnementales sans notamment bouleverser les techniques de production classiques des enseignes, notamment celles mises en place chez notre partenaire industriel Aupem Sefli.

b) Choix du mélange

Afin de remplacer la traditionnelle combinaison Ar/Ne/Hg, de nombreux mélanges binaires à base de gaz rares (Ne, Ar, Kr, Xe) ont été étudiés [Rob_2005], [Cap_2001] au cours d'un programme de recherche précédent cette thèse, mené au GREMI et au CPAT (aujourd'hui Laplace). Le tableau 3 donne, pour les 4 gaz rares et deux types d'électrodes

(activée et non activée), la valeur du coefficient d'émission secondaire ainsi que la tension de claquage mesurée. Le coefficient le plus élevé, auquel correspond la tension de claquage la plus faible, a été atteint pour le couple néon-électrode activée (avec du BaF_2), ce qui a mis en évidence l'intérêt du néon comme gaz tampon.

Tableau 3 : coefficients d'émission secondaire de plusieurs couples gaz-électrode dans les enseignes à cathodes froides planes (source : [Cap_2001]). γ(Fe +BaF_2) et γ (Fe) correspondent respectivement aux valeurs mesurées avec une électrode activée et avec une électrode sans activation.

Gaz	*γ(Fe +BaF_2)*	*Vcl*	*γ (Fe)*	*Vcl*
Ne	*0.26*	*133*	*0.09*	*193*
Ar	*0.014*	*218*	*0.003*	*282*
Xe	*0.00023*	*288*	*0.00019*	*328*
Kr	*0.0073*	*254*	*0.0036*	*285*

Le xénon a quant à lui été sélectionné pour remplacer le mercure en tant que source d'excitation du luminophore. En effet, les premiers niveaux de résonance du xénon sont les plus bas en énergie dans la famille des gaz rares. La désexcitation au fondamental des niveaux résonants du xénon entraîne la production d'un rayonnement ultraviolet de courtes longueurs d'onde, dit ultraviolet du vide. Les quatre raies de résonance du xénon sont centrées respectivement à 146.96 nm, 129.56 nm, 125.02 nm et 119.20 nm. La plus intense (146.96 nm) reste relativement proche du maximum d'excitation des luminophore (généralement localisé autour de 250 nm). Sur le graphique de la figure 4, on distingue nettement la raie à 146.96 nm et la raie à 129.56 nm. On notera également sur le graphique la présence de raies d'impuretés, notamment d'oxygène (on distingue la raie triple entre 130 et 131 nm par exemple) et d'hydrogène (raie à 121.56 nm).

Comme on l'a dit, la raie du xénon la plus intense et qui est donc majoritaire dans l'excitation du luminophore est la raie à 146.96 nm (~147 nm). C'est la raie sur laquelle nous nous concentrerons tout au long de ce manuscrit de thèse. Cependant, l'augmentation de la perte d'énergie par effet Stokes, déjà significative à 254 nm [Kit_2007], est un inconvénient de la raie à 147 nm par rapport à 254 nm. Les pertes Stokes résultent de la différence d'énergie entre les photons UV ou VUV excitant le luminophore et les photons visibles émis par la désexcitation de ce même luminophore. L'énergie perdue par effet Stokes est dissipée en chaleur dans le luminophore.

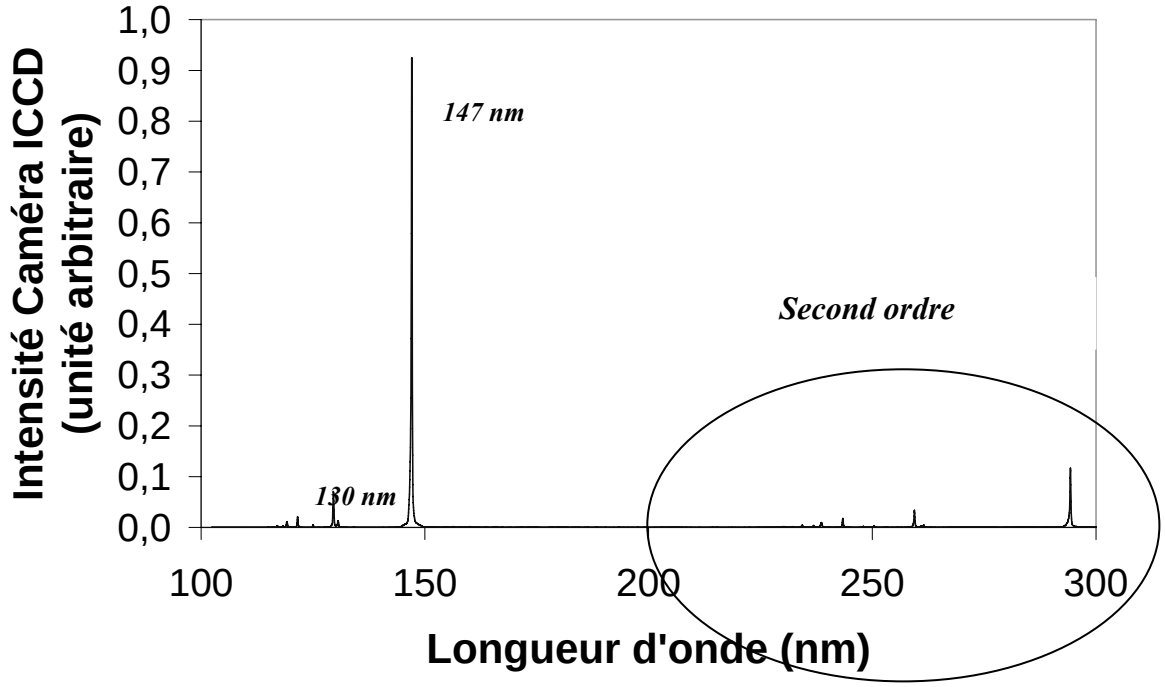


Figure 4: spectre VUV du xénon au premier et au second ordre. Réponse non calibrée en longueur d'onde.

c) Choix du mode d'excitation

Nos mesures ont montré que, sous un signal d'excitation alternatif sinusoïdal (transformateur ferromagnétique travaillant à 50Hz) ou bien sous un signal alternatif haute fréquence (transformateur électronique travaillant sous 25 kHz), la conversion de l'énergie électrique en rayonnement VUV par un mélange néon-xénon reste médiocre en comparaison de la production UV des mélanges Ar/Ne/Hg. En effet, on voit sur le graphique de la figure 5 que le flux VUV émis par la colonne positive n'augmente pas avec l'élévation de la puissance électrique injectée dans le tube. Par contre, les mesures faîtes en parallèle dans l'IR (infrarouge) montrent une forte augmentation de ce rayonnement avec la puissance électrique. Cette observation traduit probablement une excitation successive des niveaux supérieurs du xénon depuis les premiers niveaux résonants et métastables, suivi d'une relaxation conduisant notamment à une production de rayonnement infrarouge (voir figure 6 pour le diagramme d'énergie du xénon). Pour tenter de contourner cette difficulté, nous avons testé une excitation de type pulsée à faible rapport cyclique sur les tubes néon-xénon à basse pression (10 mbar). L'objectif initial, avec une excitation de ce type, était de limiter la durée d'application du courant et ainsi de minimiser l'excitation successive des niveaux du xénon. Un prototype d'alimentation pulsée a été mis au point au GREMI afin de fournir ce signal. On pourra retrouver ses caractéristiques dans le chapitre II, qui présente le dispositif expérimental. L'application du signal d'excitation pulsé aux bornes de tubes fluorescents à cathodes froides remplis de mélange néon-xénon a permis d'obtenir des décharges plus efficaces. Il est apparu, grâce aux mesures de spectroscopie résolues en temps (figure 7), qu'il existe sous excitation pulsée une émission post-décharge significative, qui peut produire un flux de lumière qui perdure plusieurs centaines de microsecondes après la fin de l'impulsion. Le faible rapport cyclique du signal d'excitation permet de ne pas couper prématurément cette émission de post-décharge par l'arrivée d'un pulse. Les observations montrent que l'utilisation d'un signal

pulsée à faible rapport cyclique s'accompagne d'une augmentation significative des performances lumineuses de l'enseigne (figure 8). On notera que les potentialités de décharges pulsées dans le xénon pur sont notamment étudiées chez Philips [Chit_2007].

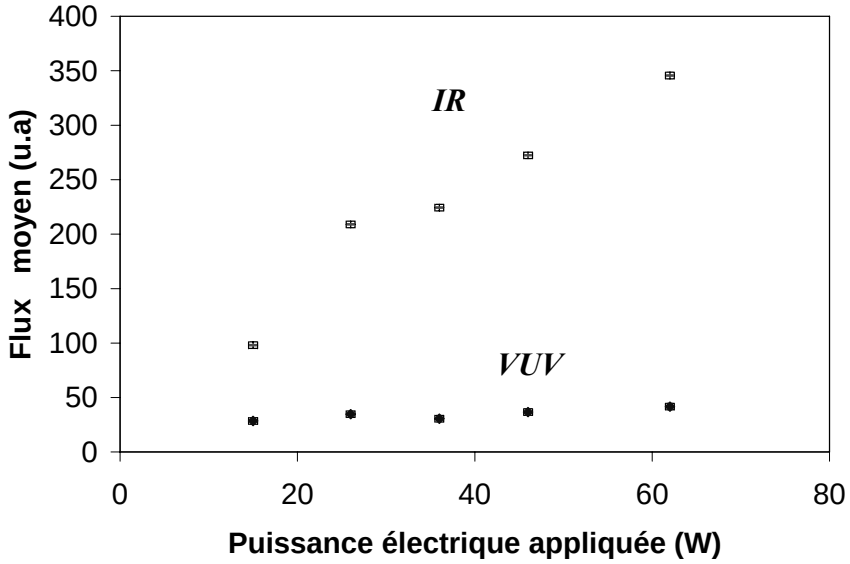


Figure 5: flux VUV et IR moyens en régime sinusoïdal selon la puissance appliquée aux bornes. Mélange Penning 10 mbar Ne-Xe (1% de xénon).

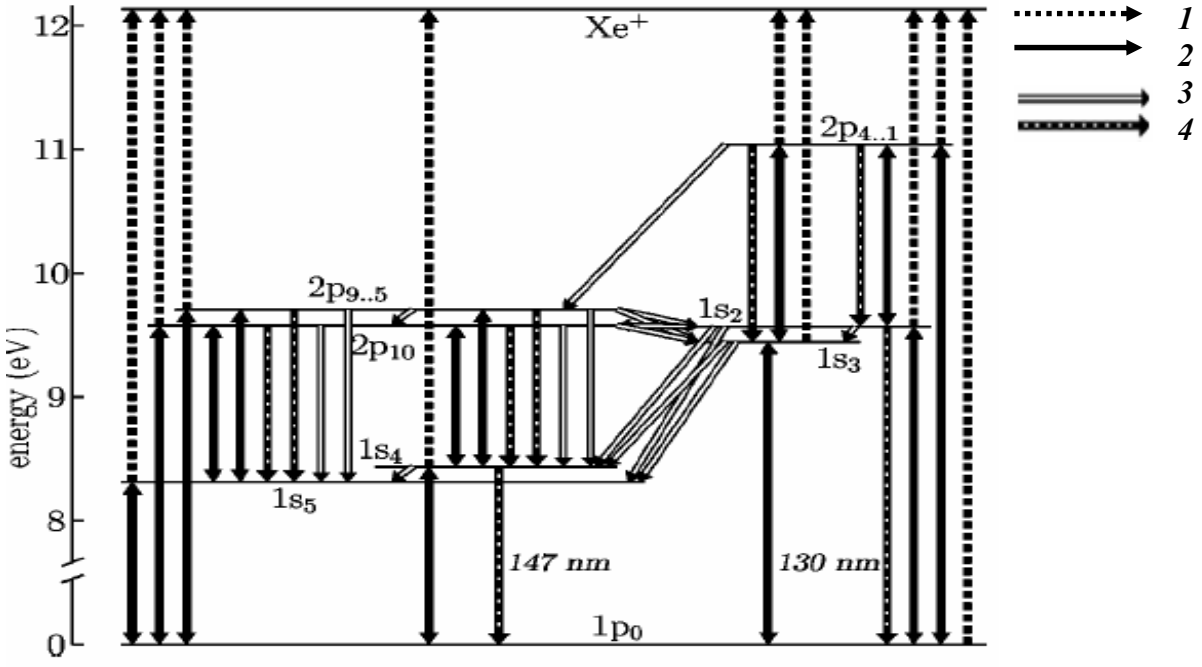


Figure 6: diagramme des niveaux d'énergie du xénon (source protégée: [Gor_2003]). Les processus considérés sont : l'ionisation par collision électronique(1), l'excitation et la désexcitation par collision électronique (2), le quenching (3) et les transitions radiatives (4) .

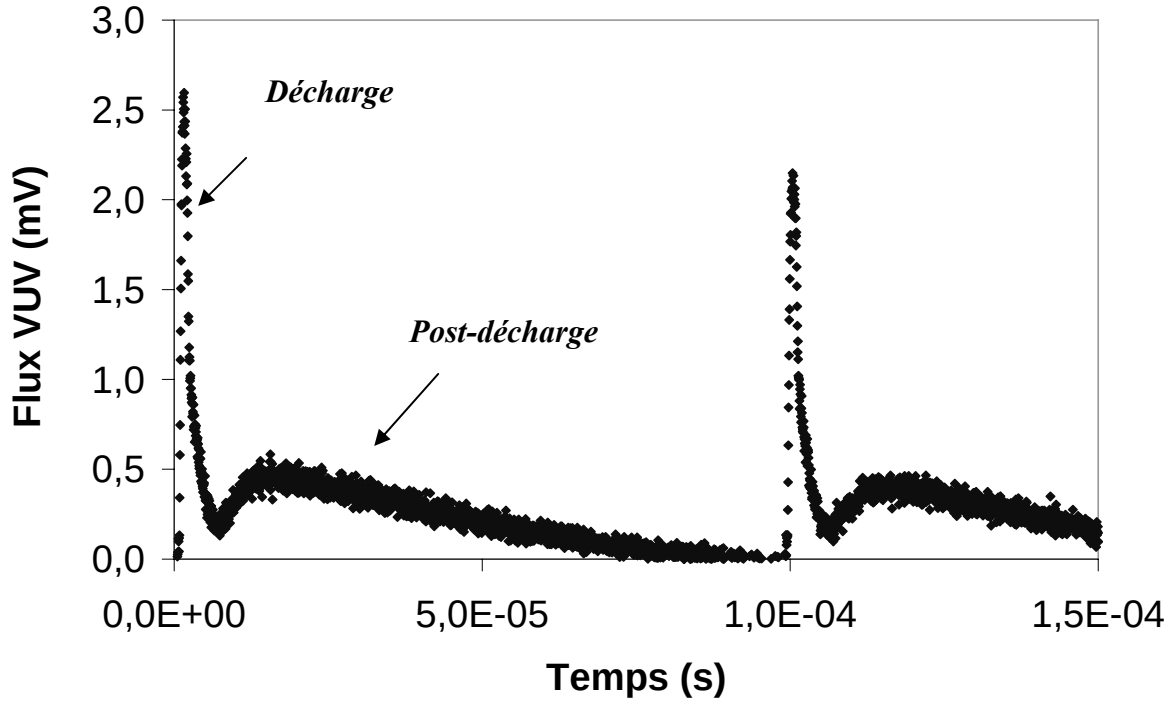


Figure 7: allure de l'émission VUV (147 nm) sous excitation pulsée à faible rapport cyclique. Mélange néon-xénon à 10 mbar. 1 % de xénon.

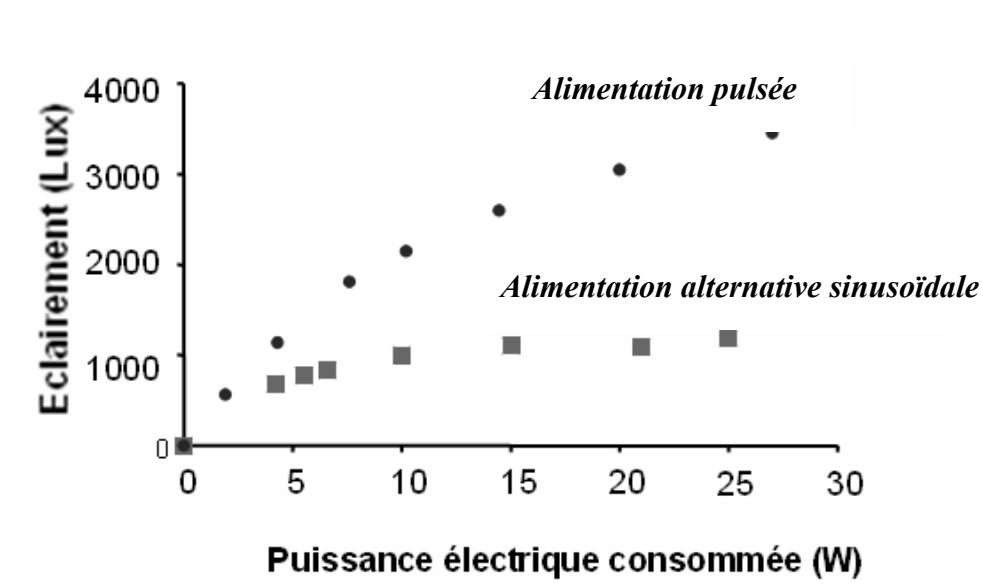


Figure 8: amélioration de l'éclairement due à l'utilisation d'un signal pulsé à faible rapport cyclique. Mélange néon-xénon. Pression de mélange : 10 mbar. 1% de xénon.

E. Conclusion du chapitre

Les décharges dans des mélanges de gaz rares et de mercure sont aujourd'hui largement utilisées dans les dispositifs d'éclairage ou de signalisation lumineuse. Effectivement, le plasma de mercure généré émet un rayonnement comprenant une raie intense à 254 nm. Les luminophores, recouvrant l'intérieur des ampoules, convertissent ce rayonnement UV en lumière visible avec un rendement de 70% au moins. Cet ensemble constitue l'un des systèmes de conversion d'énergie électrique en énergie lumineuse les plus efficaces. Cependant, le mercure constitue une source de dommages sanitaires graves, et bien que la pollution au mercure soit principalement issue des activités d'extraction minière et de combustion d'énergies fossiles, la contribution à cette pollution des DEEE (les déchets d'équipements électriques et électroniques) nécessite à la fois la mise en place de réglementation et la poursuite de recherches pour proposer une technologie plus propre mais tout aussi efficace énergétiquement. Deux technologies sont envisageables: la technologie DEL et la technologie plasma. Dans notre étude, nous nous intéressons aux potentialités de plasmas impulsionnels de néon-xénon réalisés dans des tubes fluorescents à cathodes froides. L'objectif est de remplacer les décharges Ar/Ne/Hg actuellement utilisées dans les enseignes lumineuses publicitaires ou à visée architecturale. Le choix du néon s'explique par le bon coefficient d'émission secondaire lié au couple néon-électrode. Le xénon est l'émetteur de rayonnement ultraviolet censé remplacer le mercure. Il a été choisi pour la faible énergie de son niveau résonant. Ceci permet en théorie de limiter l'énergie à apporter pour générer le rayonnement mais également de limiter les pertes Stokes, plus importantes pour les autres gaz rares dont les transitions résonantes sont plus basses en longueur d'onde que 147 nm. Notre étude a montré que l'utilisation d'un signal pulsé améliore significativement les performances lumineuses du mélange néon-xénon basse pression par rapport à l'utilisation d'un signal fourni par un ballast ferromagnétique ou électronique. En particulier, une émission significative de rayonnement VUV apparaît post-décharge, c'est-à-dire entre deux impulsions électriques. Ceci justifie de mieux comprendre les processus élémentaires conduisant à la production de lumière en régime pulsé, afin d'en permettre l'optimisation.

II. Dispositif expérimental

Ce chapitre décrit les différents éléments du dispositif expérimental utilisés pour la génération et le diagnostic des décharges étudiées au cours de la thèse.

A. Banc expérimental

L'illustration de la figure 9 présente le banc expérimental. Ce banc a été utilisé pour l'étude spectroscopique de la décharge. Il a aussi permis de remplir des enseignes qui ont ensuite été scellées au chalumeau oxygène/acétylène (figure 10). Ces ampoules scellées ont servies aux mesures d'efficacité énergétique, et aux mesures de vieillissement.

On distingue principalement sur le banc les parties suivantes :

L'***enseigne*** : en forme de T, elle est fixée sur le banc expérimental de manière étanche.

Le ***circuit de gaz :*** ce circuit permet le remplissage de l'enseigne. Il est muni de deux débitmètres, en amont desquelles se trouvent les bouteilles de gaz (Xe N48 et Ne N40) munies de manodétendeurs. Une pompe, intégrée à un bâti de pompage**,** permet l'évacuation du gaz. On a travaillé en flux de gaz continu, afin de pouvoir faire varier les conditions de pression et de proportion de gaz en cours d'expérience. Le travail en flux permet également d'éviter l'accumulation dans le tube d'impuretés qui pourraient provenir du dégazage éventuel des éléments en inox ou en plastique du circuit, et de conserver ainsi des mélanges propres. La pression est fixée par une vanne manuelle placée à l'entrée du bâti de pompage, et contrôlée par une jauge capacitive baratron entre l'enseigne et cette vanne.

L'***instrumentation optique*** : un spectromètre, placé sous vide, a permis de réaliser des mesures au centre de la colonne positive de la décharge. Une visée sous vide permet de récupérer le signal près du plasma, ce qui limite l'atténuation du rayonnement VUV par emprisonnement résonant. Les raies spectrales sélectionnées sont détectées par un tube photomultiplicateur, éventuellement placé sous vide pour les mesures dans le VUV.

Les ***alimentations impulsionnelles :*** prototypes développés au laboratoire, ces alimentations permettent de générer la décharge dans l'enseigne. Les mesures de tensions et de courant sont réalisées par des sondes, et analysées via un oscilloscope.

Ces éléments sont décrits plus en détails et individuellement dans les sections qui suivent.

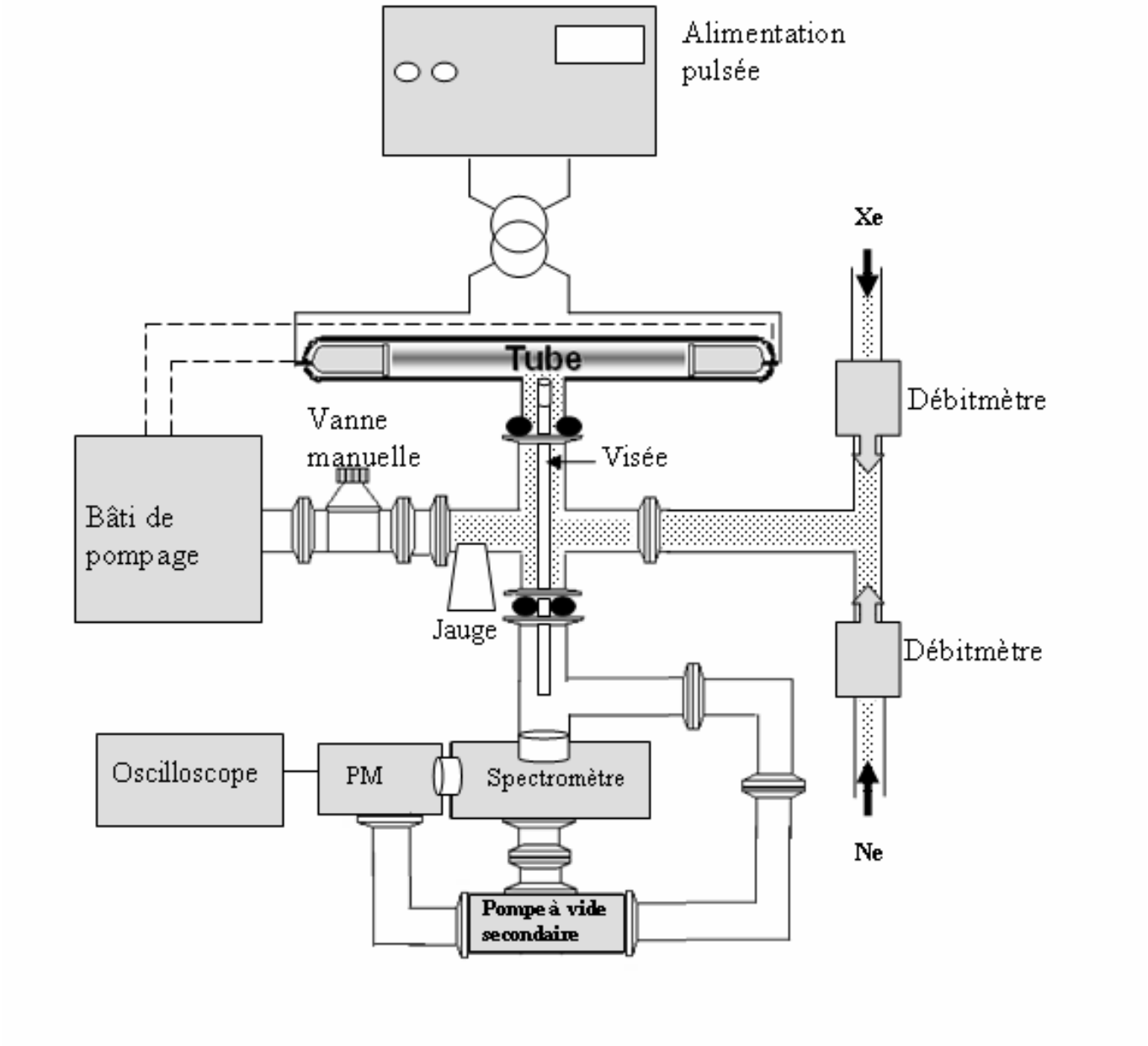


Figure 9: schéma global du banc expérimental.

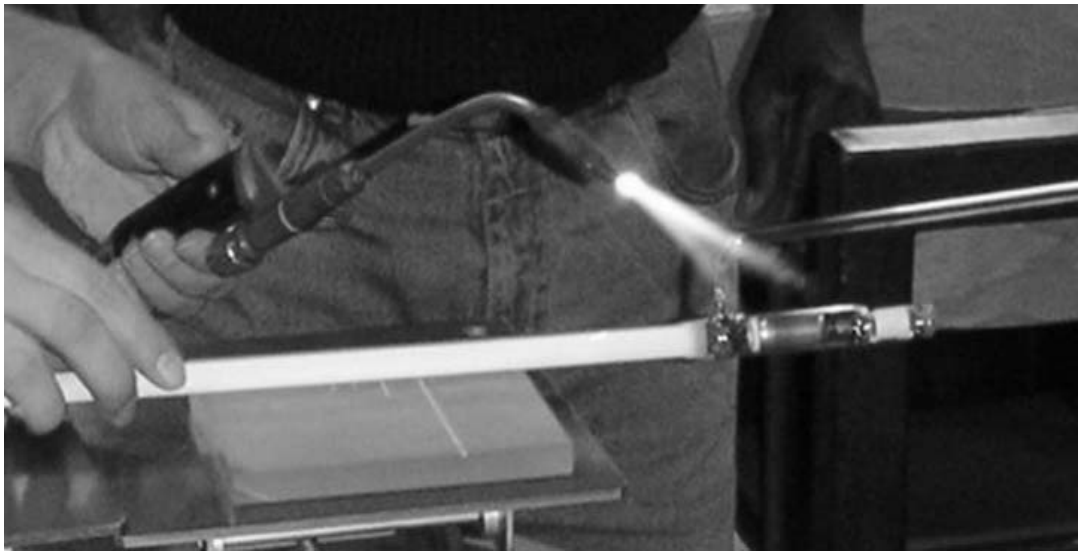


Figure 10: opération de scellement d'enseigne.

1. L'enseigne

a) L'ampoule

Généralement, les ampoules utilisées étaient des ampoules en forme de T (figure 11), qui permettent à la fois le remplissage et la visée spectroscopique au centre de la colonne positive. Sauf mention contraire, les ampoules utilisées dans cette étude possèdent un diamètre interne de 13 mm et un diamètre externe de 14mm. Le verre utilisé pour l'ampoule est du pyrex (borosilicate thermorésistant). Les ampoules destinées à être scellées, et sur lesquelles n'ont pas été fait de mesures de spectroscopie, ont la forme présentée sur la figure précédente (figure10).

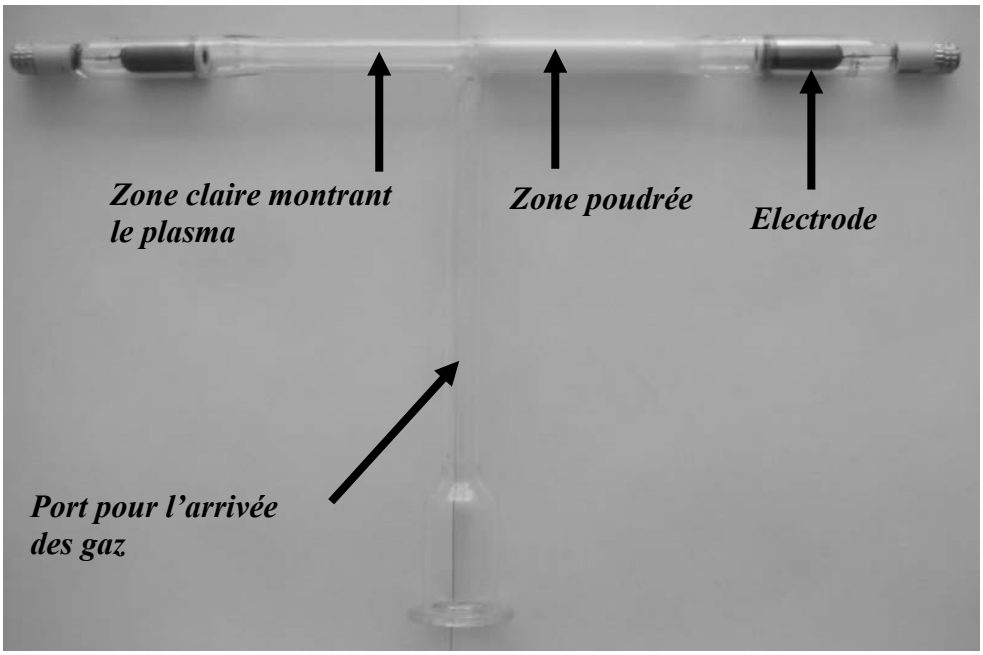


Figure 11 : ampoule expérimentale en « T » typique.

b) Les électrodes

Les électrodes (figure12) utilisées correspondent à la description qui en a été faite au chapitre I. Pour une ampoule de 13 mm de diamètre interne, les électrodes utilisées ont un diamètre interne de 10mm pour une longueur de 30 mm. Elles sont recouvertes intérieurement d'une substance composée de fluorure de baryum (oxydé lors du pompage de l'enseigne). L'oxyde de Baryum constitue la substance active qui abaisse le travail de sortie de l'électrode.



Figure 12: photographie d'une électrode creuse.

c) Le luminophore

Dans le cadre de cette étude, le travail a été réalisé avec une poudre de luminophore composée de silicate de Zinc dopé au manganèse (S15). Le spectre d'excitation (figure 13) de ce luminophore (données OSRAM) présente un maximum vers 250 nm de longueur d'onde, qui s'accorde bien avec la raie principale d'émission du mercure dans l'UV (254 nm). Cette poudre a été proposée par Aupem Sefli pour les études car représentative d'un nombre important d'applications chez les enseignistes (croix à pharmacie notamment), son spectre d'émission étant centré sur 530 nm (vert). Pour la réalisation de couleurs différentes, des poudres de chimies différentes doivent être utilisées. Chaque chimie de poudre possédant une réponse particulière à une longueur d'onde d'excitation donnée, l'émission visible dépendra du spectre d'excitation à 147 nm. L'effet Stokes entre également en jeu, et sera par exemple moins intense pour les luminophores émettant dans le bleu que pour les luminophores émettant dans le rouge.

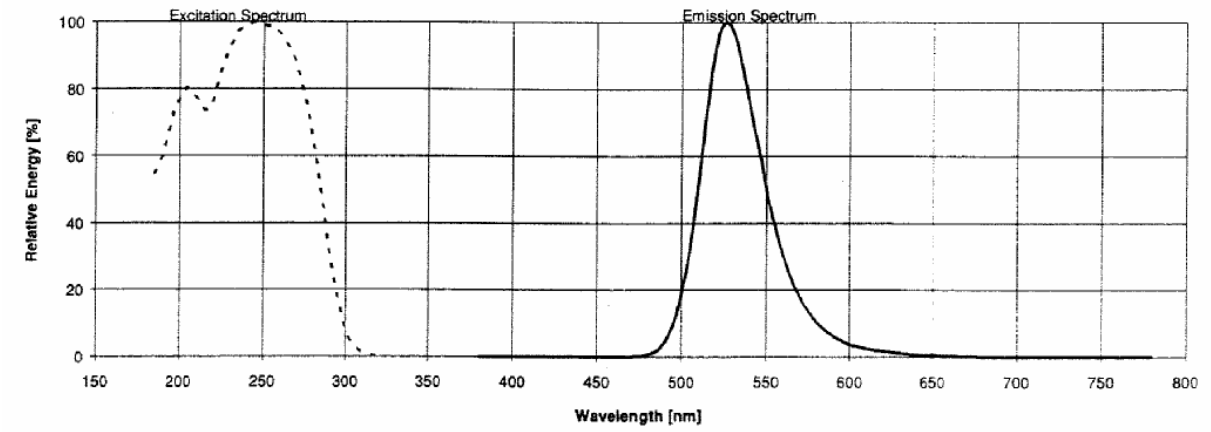


Figure 13: spectre d'excitation et d'émission de la poudre utilisée dans cette étude. Données fournisseur OSRAM.

2. Le circuit de gaz

a) Le bâti de pompage

Dans les ateliers de fabrication d'enseignes lumineuses, le bâti de pompage (figure 14) permet le dégazage puis le remplissage des enseignes, dans un ensemble d'opérations appelé traditionnellement « mise en forme». Le dégazage d'une enseigne est une opération indispensable visant à évacuer les impuretés présentes dans l'enseigne avant son remplissage par les gaz. Ce dégazage se réalise en deux étapes : l'ampoule dans un premier temps (y compris la poudre), puis les électrodes.

Afin de dégazer les impuretés incluses dans le verre et la poudre, la procédure consiste à appliquer, grâce au générateur inclus dans le bâti, une tension de l'ordre de 5 kV aux bornes du tube rempli d'un mélange d'air à 10 mbar environ, ce qui crée un plasma d'air. Lorsque le plasma est établi, on augmente l'intensité du courant (de 0 à 400 mA environ) afin d'élever progressivement la température de l'ampoule et de la poudre jusqu'à 300°C environ, ce qui permet un dégazage progressif des impuretés. Il faut veiller à ne pas dépasser cette température afin de ne pas endommager les poudres. Afin de dégazer ensuite les impuretés incluses dans les électrodes, il est nécessaire de diminuer la pression d'air jusqu'à une valeur de l'ordre du mbar tout en augmentant l'intensité du courant jusqu'à 600mA environ. De cette manière, la faible pression d'air à l'intérieur de l'ampoule ne permet plus aux électrodes de dissiper leur énergie. Les électrodes, sous l'action du bombardement ionique, atteignent alors une température comprise entre 800 et 900°C, ce qui permet un dégazage efficace des impuretés. Cette opération ne doit pas dépasser 30 secondes afin d'éviter d'endommager les électrodes. L'ensemble des impuretés dégazées est évacué par pompage. Ce traitement thermique a également pour objectif d'activer (par oxydation du baryum) le fluorure de Baryum à l'intérieur des électrodes afin de permettre l'abaissement du travail de sortie des électrodes. Il faut noter que nous n'avons naturellement pas disposé d'une quantité illimitée d'enseignes, notamment en forme de T. Une enseigne était donc utilisée pendant plusieurs mois. Or, bien que le flux fût généralement maintenu dans l'ampoule pour minimiser le dépôt d'impuretés, un dégazage devait être régulièrement réalisé. Ceci a probablement eu une action négative à la fois sur les électrodes et sur les poudres, à cause des températures importantes auxquelles elles sont soumises lors du bombardement. Les conséquences que l'on a pu observer sur une enseigne utilisée plusieurs mois de suite et subissant en moyenne 1 ou 2

bombardements par semaine est une diminution progressive de ses performances. C'est pourquoi les études concernant l'efficacité énergétique ont été faites dans des enseignes bombardées une seule fois, puis remplies dans les bonnes proportions et scellées. Les enseignes en T, qui pouvaient souffrir des multiples bombardements auxquels on les soumettait, ont surtout été utilisées pour les mesures de spectroscopie sur le plasma. On notera sur ce sujet que des études ont été menées au laboratoire Laplace pour caractériser l'impact du chauffage des poudres sur l'efficacité de la conversion du VUV [Bea_2007], dans le cadre du développement de lampes sans mercure en DBD.

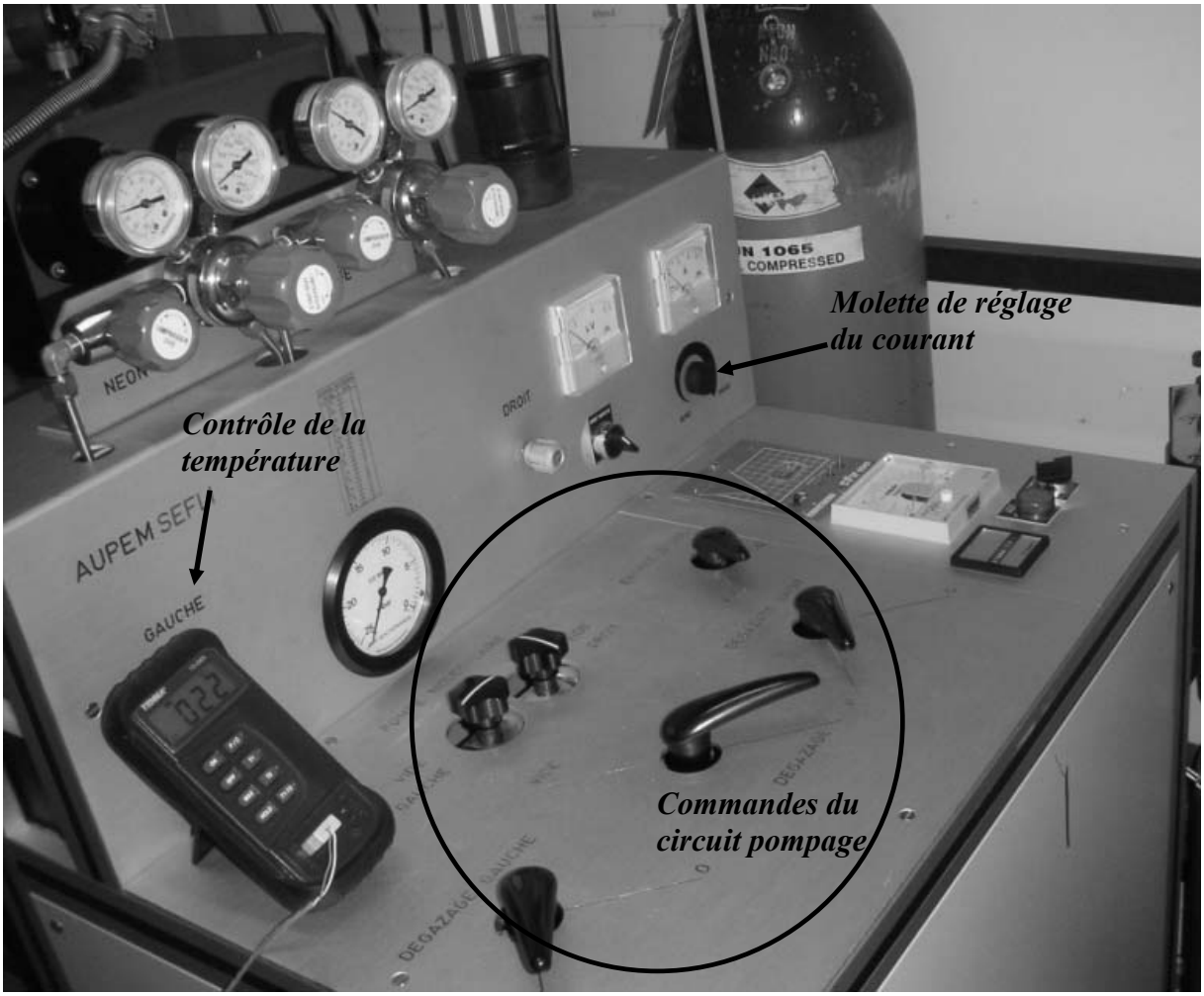


Figure 14: tableau de commande du bâti de pompage.

b) L'arrivée des gaz

Dans notre montage, l'arrivée des gaz empruntait un circuit indépendant du bâti. Cette arrivée était contrôlée par des débitmètres électroniques (Brooks 5850 TR) ré-étalonnés à l'azote N50. Les débits utilisés ont été de l'ordre de quelques ml/min pour le néon (pleine échelle du débitmètre : 150ml/min, précision 1%), et de quelques 1/10° ml/min pour le xénon (pleine échelle : 5ml/min, précision 1%), afin de limiter la consommation de gaz rares au cours des expériences. Cependant, à l'ouverture, la valeur de consigne était systématiquement dépassée et la stabilisation du débit à la valeur de consigne nécessitait plusieurs secondes.

Ceci imposait d'attendre quelques minutes après l'ouverture des débitmètres pour pouvoir travailler dans un mélange homogène et ayant les bonnes proportions. Les mesures de pression étaient réalisées en ligne grâce à une jauge capacitive Baratron (Alcatel Type 623) mesurant des pressions jusqu'à 100 mbar.

3. Instrumentation optique

a) Spectrométrie

On a utilisé un spectromètre de 0.4 m de focale muni de deux réseaux (réseau 1200 traits/mm ou 300 traits/mm) (figure 15). L'entrée du spectromètre est dotée d'un hublot en fluorure de magnésium, transparent aux rayons VUV jusqu' à une limite basse de 120 nm environ. Afin que le rayonnement puisse se propager dans le spectromètre, celui-ci a été placé sous vide par pompage.

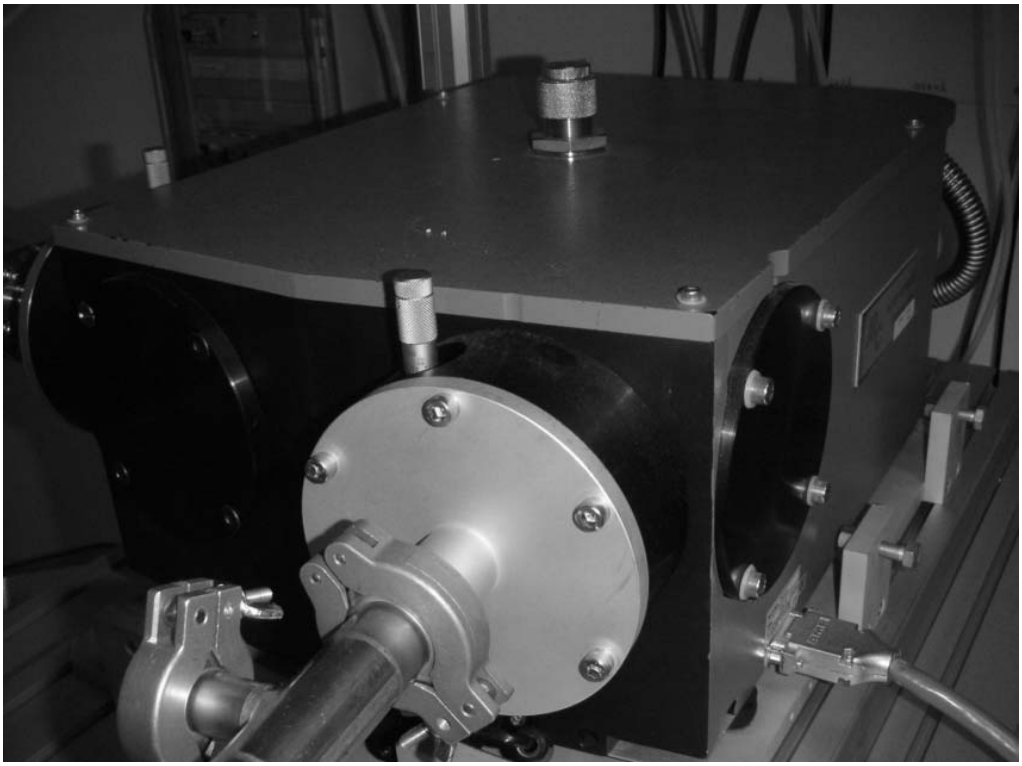


Figure 15: spectromètre principal de 40 cm de focale.

Comme le rayonnement à 147 nm ne traverse ni le verre constituant l'ampoule d'une enseigne, ni l'air, on a utilisé des enseignes munies d'un port, ce qui leur confère une forme de T. Le port, outre le remplissage, permet la propagation du rayonnement depuis la décharge luminescente jusqu'au hublot en fluorure de magnésium du spectromètre. Cependant, au cours de son cheminement (figure 16), le rayonnement subit l'emprisonnement résonant de Holstein [Hol_1947], [Hol_1951], qui augmente statistiquement la durée de vie des niveaux résonants et donc la probabilité de désexcitation par quenching plutôt que par désexcitation radiative. Ce quenching peut être le fruit de collisions à deux corps entre le Xe* et le Ne [Wie_1980]. La conséquence de cet emprisonnement est une forte diminution du signal à 147 nm. L'emprisonnement de Holstein est d'autant plus élevé que la densité des neutres de xénon est élevée.

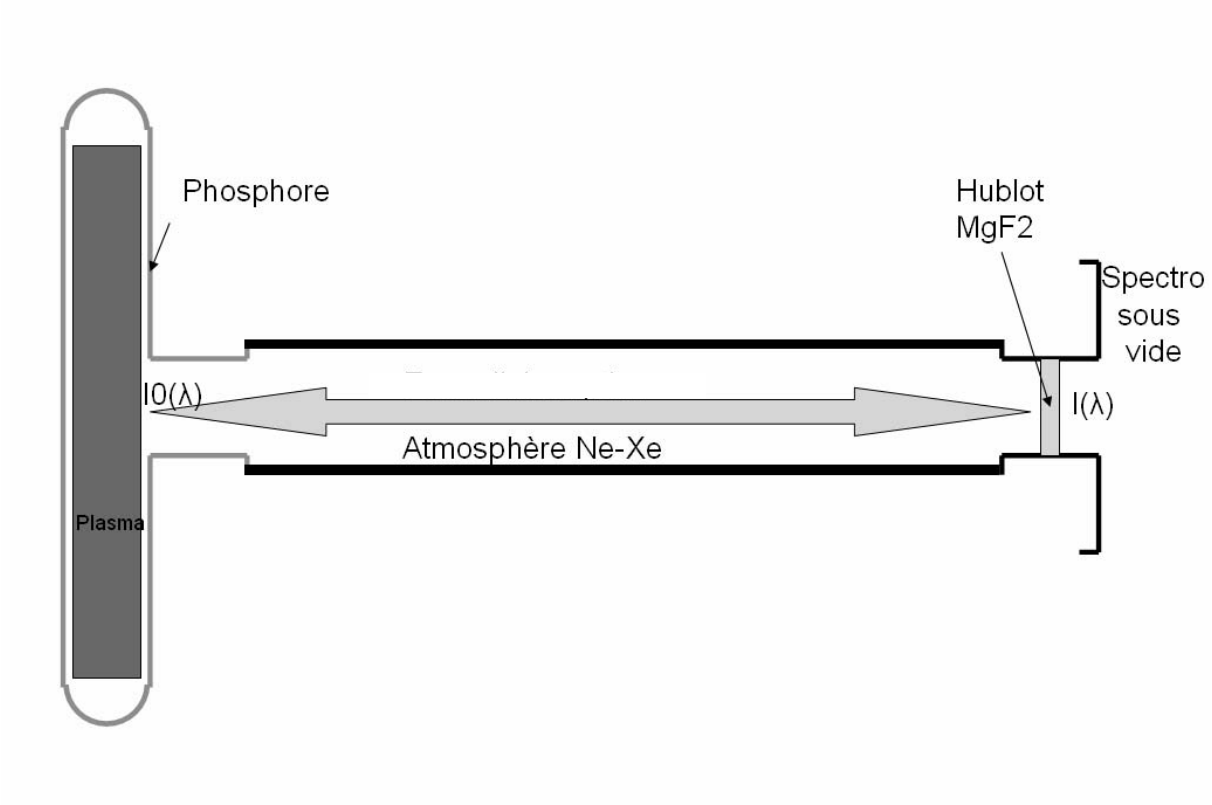


Figure 16: épaisseur de gaz froid entre le plasma et le hublot d'entrée du spectromètre (environ 50 cm).

Une solution expérimentale (figures 17 et 18) a été mise en place afin d'éviter l'emprisonnement Holstein de la raie à 147 nm dans la colonne de gaz froid : une bride a été placée entre l'ampoule et le spectromètre, pour définir une zone sous atmosphère de néon-xénon et une zone sous vide. Une visée sous vide, munie d'un hublot en fluorure de magnésium (transparent au VUV jusqu'à 120 nm environ), traverse cette bride de manière étanche afin d'acheminer le rayonnement récupéré dans le plan du luminophore jusqu'à l'entrée du spectromètre. Cette visée a permis l'observation d'un petit élément de surface de plasma (figure 19). Compte tenue de sa longueur importante et du faible diamètre du hublot, elle constitue un système très peu ouvert dont le demi angle d'ouverture i est estimé à environ 0.7° (arctan 4/ 340). Ainsi, la surface de plasma observable via ce système est équivalent à celui du hublot, soit une dizaine de mm^2 .

Enfin, un spectromètre à fibre Ocean optics, d'une résolution moindre, a également été utilisé dans certaines expériences, notamment pour observer la réponse du luminophore lorsque le spectromètre principal est utilisé pour observer le rayonnement de la décharge.

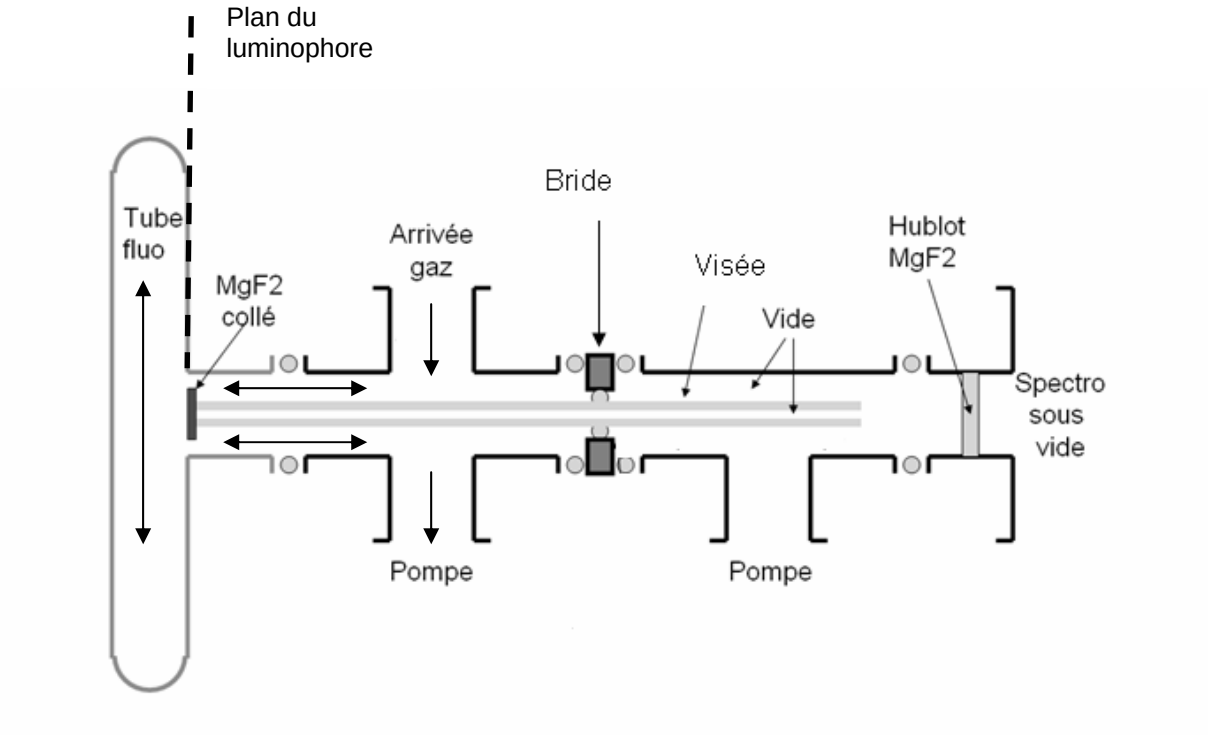


Figure 17: Schéma de principe de la visée sous vide.

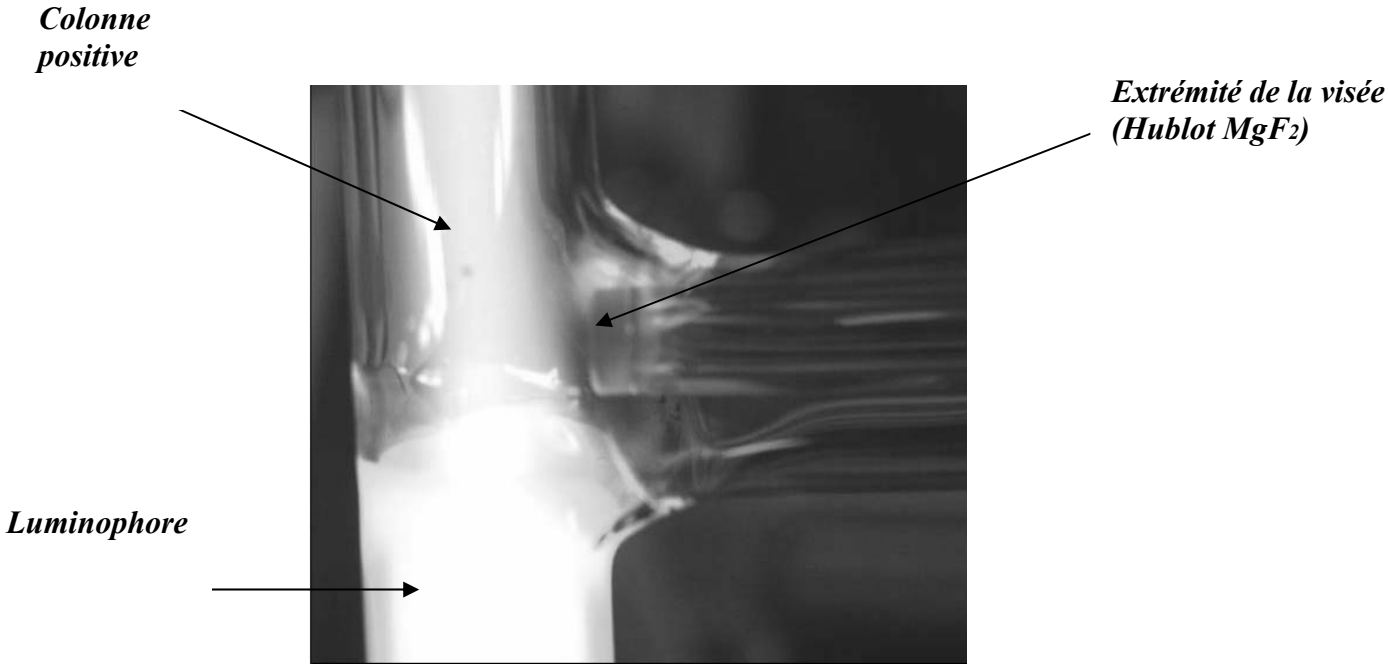


Figure 18: photographie de la visée placée dans le plan du luminophore.

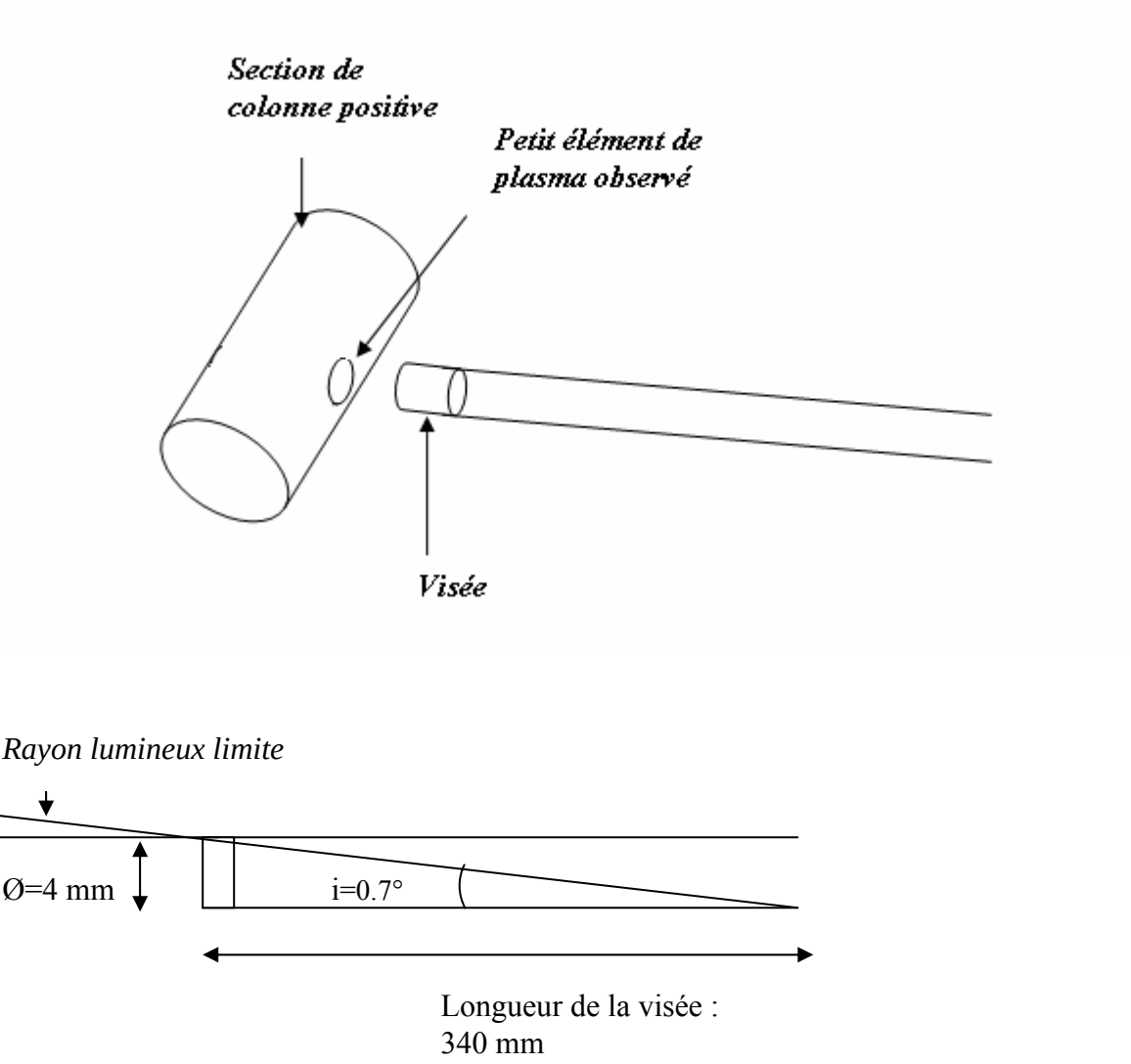


Figure 19: schéma représentant le petit élément de plasma observable par la visée, et l'ouverture géométrique de celle-ci.

b) Tubes Photomultiplicateurs

La spectroscopie dynamique a été faite à l'aide de deux tubes photomultiplicateurs à réponse rapide, interchangeables, l'un étant sensible dans l'UV (Hamamatsu R1080) entre 100 et 300nm, l'autre dans l'UV, le visible et le proche infrarouge (Hamamatsu R955)) entre 160 et 900 nm. Ils étaient reliés à la sortie prévue à cet effet du spectromètre. Afin de ne pas remettre à l'air le spectromètre à chaque changement de photomultiplicateur, un raccord muni d'un hublot en fluorure de magnésium a été installé entre la sortie du spectromètre et l'entrée du PM (figure 20).

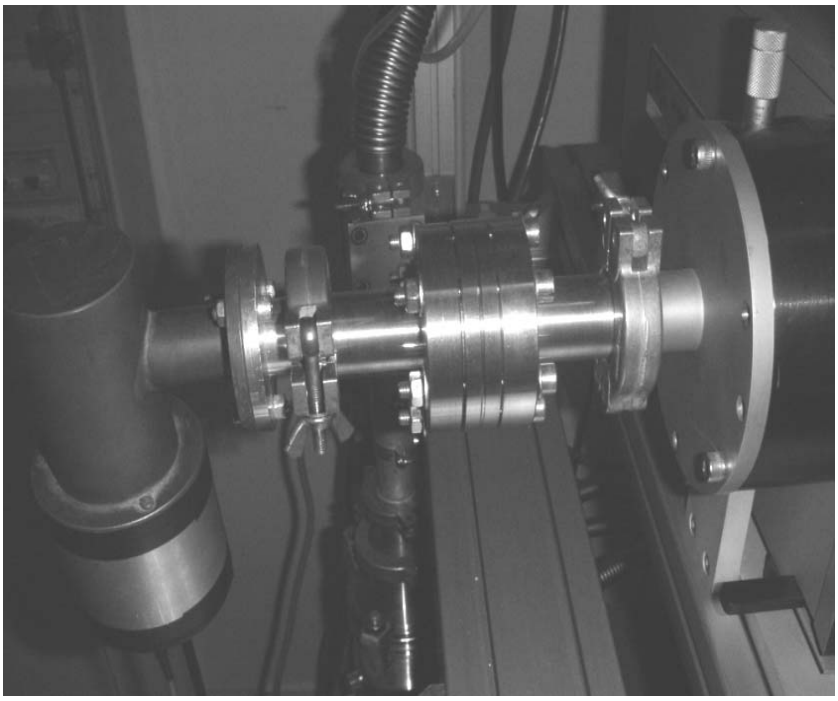


Figure 20: tube photomultiplicateur monté sur le hublot MgF_2

La figure 21 présente une allure temporelle du rayonnement du xénon à 147 nm enregistré au moyen du tube photomultiplicateur R1080. L'image de la quantité de rayonnement émise au cours d'un cycle décharge/post-décharge peut être obtenue à partir des enregistrements au PM en intégrant dans le temps le signal obtenu.

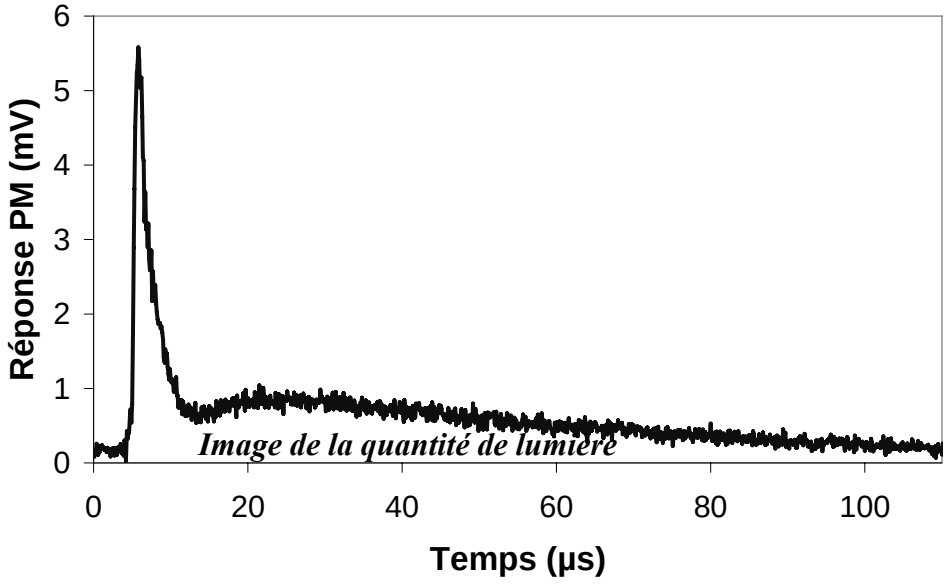


Figure 21: profil temporel de l'émission centrée sur 147 nm. L'aire sous la courbe, calculée en intégrant le signal dans le temps, donne une image, en mV.s, de la quantité de lumière (ici à 147 nm) émise.

4. Prototype d'alimentation impulsionnelle

L'alimentation des enseignes sans mercure a été réalisée grâce à un prototype d'alimentation impulsionnelle (baptisé GECOPULSE) développé au GREMI. La figure 22 présente un schéma de principe de ce type d'alimentation. Plusieurs versions de ce prototype ont été élaborées.

Ce prototype fonctionne sur la base d'un pont en H de transistors bipolaires à grille isolée (IGBT). Des potentiomètres permettent de faire varier la durée T d'une impulsion et leur fréquence F. Le prototype reçoit en entrée une tension continue. Pour la version servant aux expérimentations (figure 23), cette tension continue est délivrée par une alimentation externe continue variable (Fug MCN 350-1250) entre 0 et 1250 V, mais certaines versions du prototype, utilisées en démonstration ou pour les études de vieillissement, intègrent cette alimentation, qui fournit alors une valeur fixe de 320 V environ (figure 24)). Dans tous les cas, le prototype d'alimentation GECOPULSE fournit à sa sortie des impulsions µs bipolaires de même amplitude que la tension continue d'entrée. Un transformateur élévateur de tension permet d'atteindre la tension nécessaire à l'amorçage des enseignes, soit environ 1 kV. (Les résultats obtenus, et que l'on développera, ont montré l'intérêt d'élaborer, pour limiter les pertes énergétiques, un nouveau prototype, sans transformateur de sortie, noté GECOPULSE II. Dans ce cas, la tension fournie en entrée est directement de l'ordre du kV.)

La figure 25 présente les deux étages principaux du prototype GECOPULSE: l'étage de commande (a) qui met en forme les impulsions et l'étage de puissance (b) qui permet d'obtenir des impulsions à la tension d'alimentation. Dans l'étage de commande, la durée d'impulsion est fixée grâce à un multivibrateur monostable DM74LS221N. La fréquence est fixée par un multivibrateur astable CD4047BCN. Une multiplication logique de ces deux signaux (via une porte ET SN74LS11N) génère ensuite des signaux positifs TTL déphasés de Π. Ces signaux déphasés sont envoyés sur le driver de MOS (MC34152P) qui met en forme les impulsions à une tension permettant la commutation des transistors. Des transformateurs d'impulsions permettent d'isoler la partie commande de la partie puissance (les entrées In1 et In2 correspondent aux sorties Out1 et Out 2). Les entrées des transformateurs d'impulsions sont connectées en opposition afin de permettre la commutation des transistors T1 et T4, puis T2 et T3. On observe ainsi aux bornes du tube un signal impulsionnel alternatif (figure 26), ce qui permet d'homogénéiser l'usure des deux électrodes.

Un oscilloscope Tektronix TDS510A possédant 4 voies a été utilisé pour enregistrer les données électriques du signal impulsionnel. Les mesures de tension ont été réalisées à l'aide de sondes de potentiel 4kV GE. Le courant était prélevé avec une sonde à effet Hall Tektronix TCP 202. Cette sonde procure une grande commodité de mesure, puisque elle se clipe sur la gaine du câble traversé par le courant à mesurer.

La puissance totale consommée par l'ensemble alimentation pulsée-enseigne était mesurée à la prise avec un compteur électrique du commerce. Le mode opératoire pour la mesure de la puissance appliquée aux bornes de l'enseigne est la suivante : l'impulsion de tension est acquise par soustraction des potentiels électriques fournis par les sondes de tension 4kV, placées chacune à une borne. L'impulsion de courant est mesurée par la sonde à effet Hall TektroTCP202. La multiplication du signal de courant par le signal de tension fournit une énergie par pulse (W.s). La multiplication de cette valeur par la fréquence du signal et par le coefficient d'atténuation des sondes de tension fournit la puissance électrique directement appliquée au tube. Dans le cas d'un signal sinusoïdal, cette méthode revient à calculer le produit $Ieff \times Ueff$.

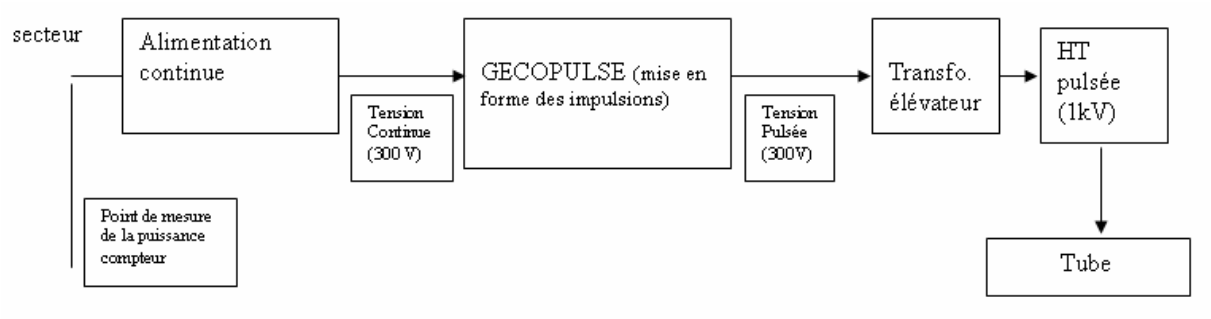


Figure 22: schéma bloc du dispositif d'alimentation impulsionnelle.



Figure 23: face avant de Gecopulse et de l'alimentation continue externe (Fug MCN 350-1250).

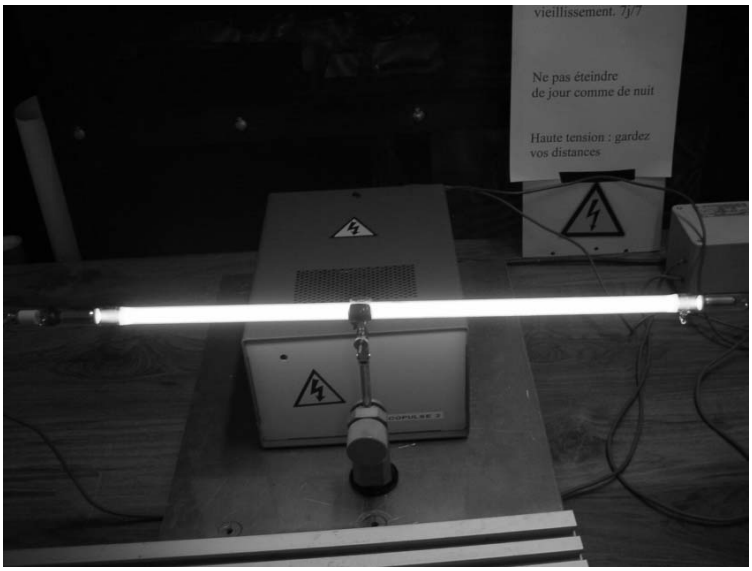


Figure 24: Photographie d'une version portable de Gecopulse, utilisée en vieillissement.

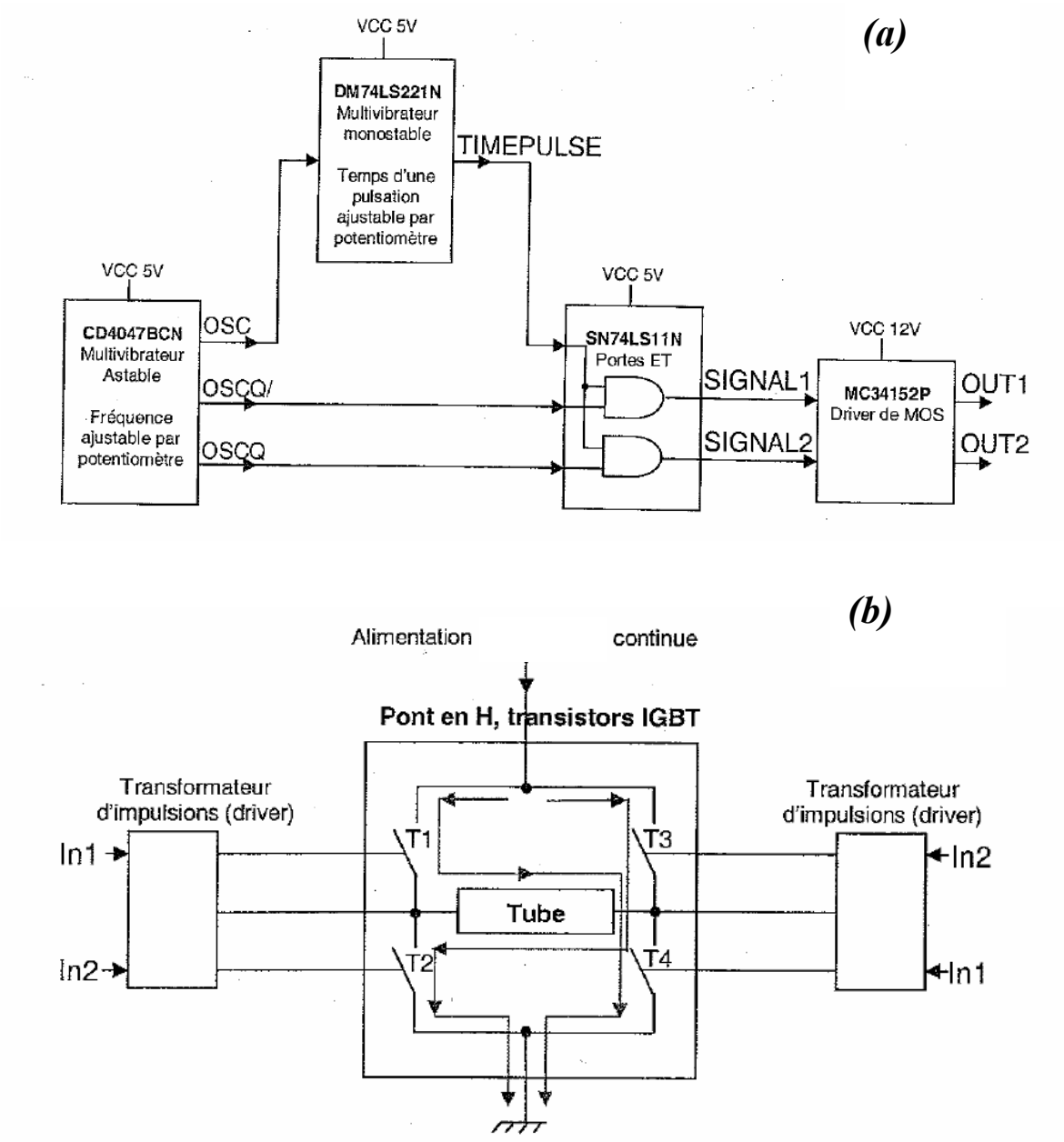


Figure 25: étage de commande (a) et étage de puissance (b) de l'alimentation impulsionnelle.

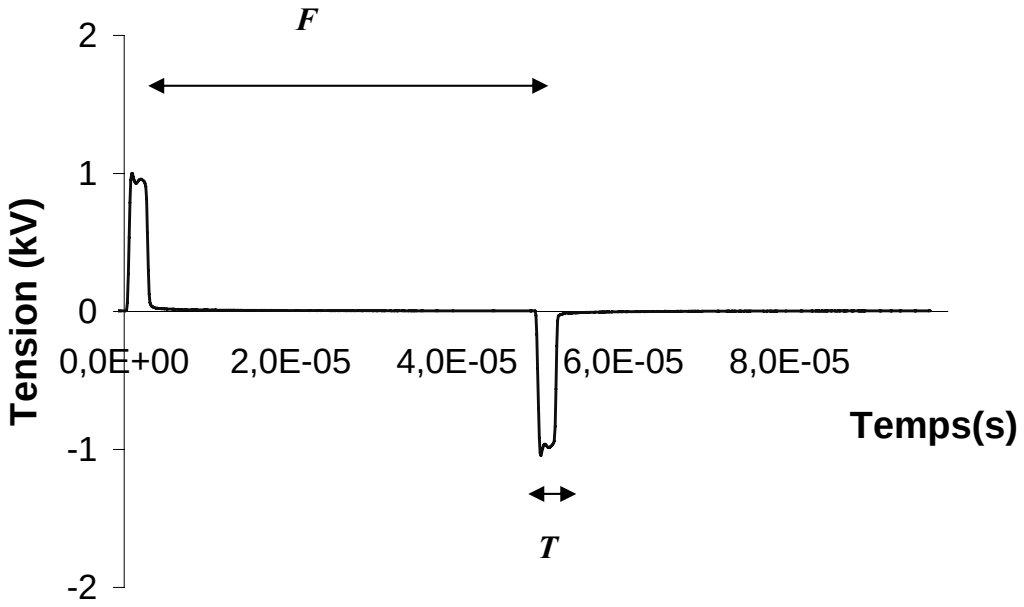


Figure 26: allure du signal d'excitation impulsionnel.

B. Autres Instruments

On disposait, pour les mesures photométriques, d'une sphère intégratrice et d'un luxmètre. Une sphère intégratrice est un instrument d'optique constitué d'une enceinte sphérique creuse intérieurement recouverte d'une couche réfléchissante de sulfate de baryum pour les applications dans le visible et le proche IR. Les rayons lumineux émis par une source optique à l'intérieur de cette cavité sont réfléchis un très grand nombre de fois sur la couche de sulfate de baryum, ce qui fait de la sphère un diffuseur permettant de mesurer, via une fibre optique et un spectromètre, la puissance lumineuse totale émise par la source quelle que soit la géométrie de celle-ci. Cette puissance lumineuse (ou flux lumineux) est mesurée en lumen (lm) dans le système d'unités visuel et en Watt (W) dans le système énergétique. La sphère permet entre autre la mesure des coordonnées chromatiques de la source et la détermination de son spectre. On a utilisé une sphère intégratrice SLM-40 de SphereOptics de 1 m de diamètre (figure 27) capable de mesurer théoriquement des flux lumineux jusqu'à 25000 lm. Son étendue spectrale va de 300 à 1050 nm. Les mesures antérieures à l'acquisition de la sphère ou bien les mesures sur les enseignes en T reliées au banc expérimental ont été réalisées quant à elles à l'aide d'un Luxmètre Chomamètre portatif de Minolta (figure 27), qui fournit la valeur de l'éclairement au contact du tube (en Lux ; le Lux correspond à l'éclairement d'une surface qui reçoit uniformément un flux lumineux normal de 1 lumen par mètre carré). Le luxmètre fournit également les coordonnées chromatiques de la source. On a réalisé, dans les mêmes conditions expérimentales, des mesures dans la sphère puis au luxmètre. Ceci donne, pour un tube de 14 mm de diamètre externe et de 50cm de distance

inter-électrode, la caractéristique lm/lux de la figure 28. Ainsi, il est possible de comparer des mesures réalisées au luxmètre et à la sphère.

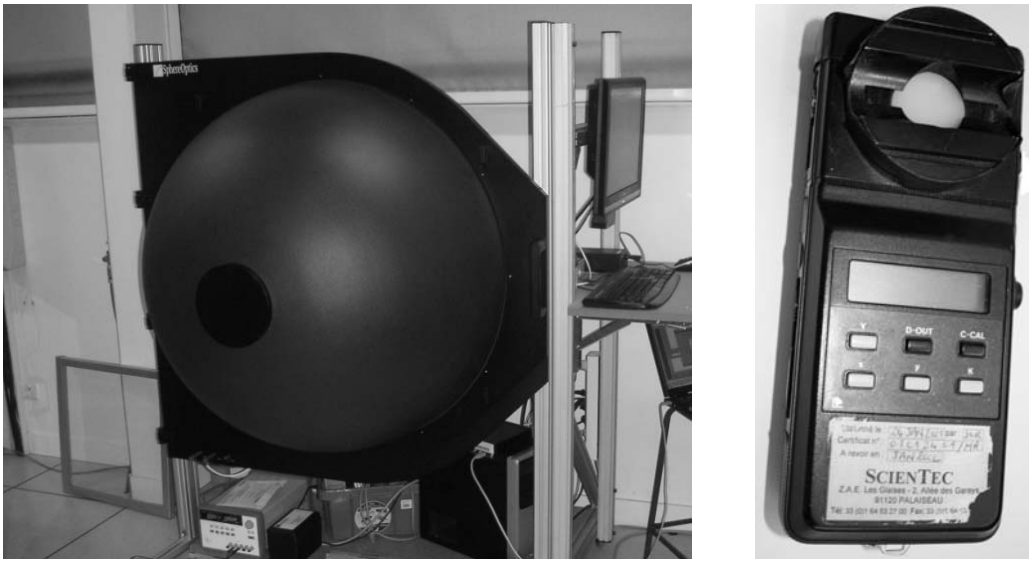


Figure 27: à gauche, photographie de la sphère intégratrice. A droite, photographie du luxmètre à main à appliquer sur l'enseigne.

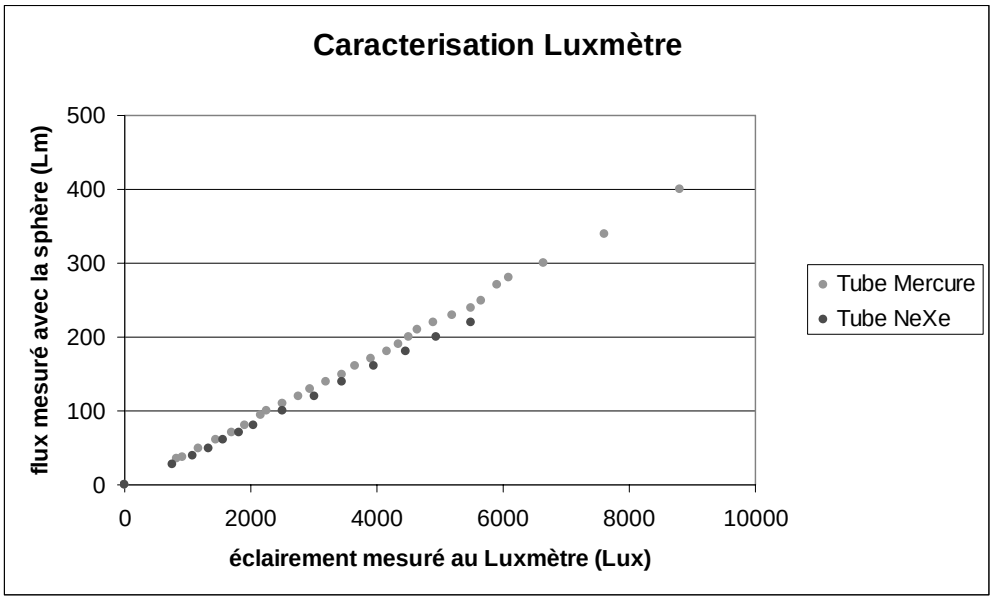


Figure 28: courbe permettant de relier les valeurs mesurées à la sphère (en lm) avec les mesures réalisées au luxmètre (en lux).

III. Production du rayonnement

Ce chapitre se concentre sur les mécanismes gouvernant les processus radiatifs. Ces mécanismes seront explicités à partir des résultats de spectroscopie résolue en temps et au moyen d'un modèle simplifié prenant en compte un nombre restreint de réactions.

A. Mesures électriques

Avant de s'intéresser à la production de rayonnement VUV et à ses mécanismes, on présente l'allure des impulsions de courant et de tension. La figure 29 présente ces allures pour une décharge Penning néon-xénon (durée d'impulsion : 5µs). On distingue globalement deux phases : une première phase de forte tension et de faible courant, et une seconde phase où apparaissent une rampe de courant et une chute de la tension aux bornes du tube. La chute de la tension est consécutive à une augmentation des pertes dans le transformateur (inductance de fuite) lorsque le courant augmente. On remarque par ailleurs sur la tension, après le front de montée, une série d'oscillations amorties, dues à la capacité parasite du transformateur. La limite entre les deux phases, et la valeur maximale atteinte par le courant sont fortement dépendantes des paramètres de l'excitation électrique. La partie B du chapitre IV reviendra sur l'influence de ces paramètres. On peut penser que la densité d'ions augmente de façon progressive au cours de la phase I, jusqu'à devenir suffisante pour assurer un bombardement ionique des électrodes efficace et entraîner une forte élévation de la densité d'électrons secondaires, provoquant la rampe de courant observée à la phase II.

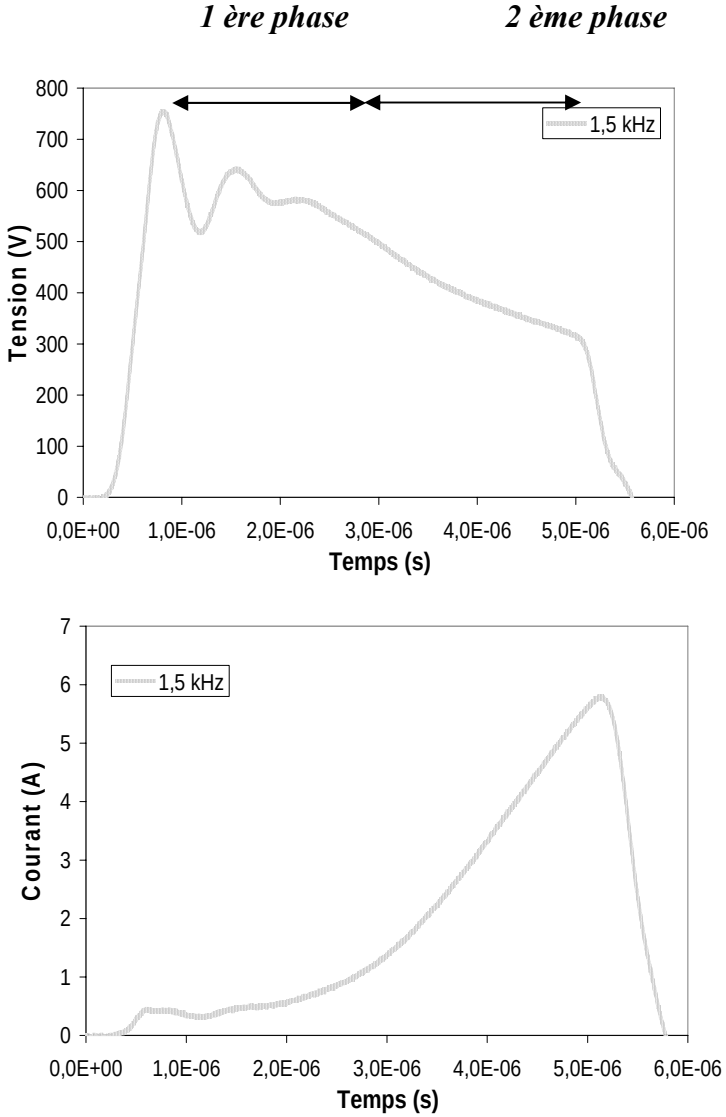


Figure 29: allure de courant-tension d'une décharge dans un mélange Ne-Xe (50 mbar, 1% de xénon) sous excitation impulsionnelle (5µs, 1.5 kHz).

B. Production du rayonnement VUV

1. Au cours de l'impulsion

La figure 30 présente l'allure du courant ainsi que le rayonnement VUV, visible et IR du xénon produit par la décharge pour une condition expérimentale représentative. La figure 31 présente l'évolution d'une raie intense du néon neutre, ainsi qu'une raie du Xe^{+*}. L'enregistrement a été réalisé au moyen des tubes photomultiplicateurs montés en sortie du spectromètre principal.

Au cours de la phase I, et dès l'apparition du courant, on a enregistré un rayonnement traduisant le peuplement des niveaux du xénon et du néon neutre. La forte valeur du champ électrique pendant la formation de la décharge permet de conférer aux électrons une énergie cinétique suffisante pour peupler, par collisions électrons-atomes directes, les différents niveaux excités du xénon et du néon (voir figure 32 pour un schéma simplifié des niveaux d'énergie des deux gaz). Lorsque la décharge est formée, les champs électriques mis en jeu diminuent fortement, ce qui limite très significativement le taux d'excitation ou d'ionisation par collisions électrons-atomes directes.

En phase II, on note une diminution du rayonnement à 147 nm, et, dans le même temps, une forte élévation de la raie à 640.2 nm du néon. Par ailleurs, certaines raies issues de transitions entre des niveaux excités de l'ion xénon ont été mises en évidence : 529.2 nm, 533.9 nm, 541.9 nm (niveaux hauts respectifs 26 eV, 28.9 eV et 26.1 eV). Expérimentalement, la raie à 529.2 nm est la plus intense, son évolution temporelle a donc été enregistrée. On observe que 529.2 nm semble suivre l'évolution de la raie 640.2 nm au cours de la phase II de l'impulsion. On a cherché à comprendre les évolutions observées. En phase II, la décharge étant formée, l'énergie cinétique des électrons dans la colonne positive est à priori faible (quelques eV). La figure 33 montre les valeurs prises par les sections efficaces de collision électrons-atomes pour le xénon. On constate que les processus d'ionisation à partir des niveaux excités ou très excités du xénon neutre sont déjà importants et majoritaires pour de faibles valeurs de température électronique. Ainsi, les processus d'ionisation du xénon à partir des neutres excités sont favorisés, ce qui concurrence la désexcitation radiative et permet d'expliquer la chute du rayonnement observée à 147 nm, 467.1 nm et 823.1 nm. On notera, au regard des courbes de sections efficaces [7] et [8] de la figure 33, qu'une faible variation dans l'énergie cinétique moyenne des électrons dans la colonne positive peut fortement influencer la production des ions de xénon atomique.

Concernant le néon, les choses sont différentes. L'observation des sections efficaces de collision électrons-atome pour le néon montre que les processus d'ionisation ne deviennent significatifs que pour des températures électroniques relativement élevées (autour de 10 eV). Ainsi, les électrons n'ont pas l'énergie suffisante pour dépeupler les neutres excités de néon par des collisions ionisantes. Les niveaux d'énergie du néon continuent donc probablement d'être excités par palier, ce qui ne nécessite que des électrons de faible énergie. Ceci permet de comprendre pourquoi le rayonnement du néon ne chute pas, au contraire du rayonnement produit par le xénon. La formation « continue » de *Ne**, et notamment de métastables à longue durée de vie, favorise également certainement la production d'ions de xénon atomique (par effet Penning), ainsi qu'un transfert d'excitation conduisant au peuplement des niveaux excités des ions de xénon, à l'origine du rayonnement à 529.2 nm notamment.

Les phénomènes régissant la cinétique réactionnelle des espèces au cours de l'impulsion sont nombreux, et dépendent fortement, comme on le verra au chapitre IV, de la durée et de la fréquence des impulsions. On a vu qu'une faible variation de Te peut avoir des conséquences importantes sur les processus réactionnels mis en jeu durant l'impulsion.

Cependant, il apparaît globalement que, au cours de l'impulsion, l'élévation du courant a tendance à favoriser l'ionisation et même l'apparition d'ions xénon excités, au détriment de la production de VUV.

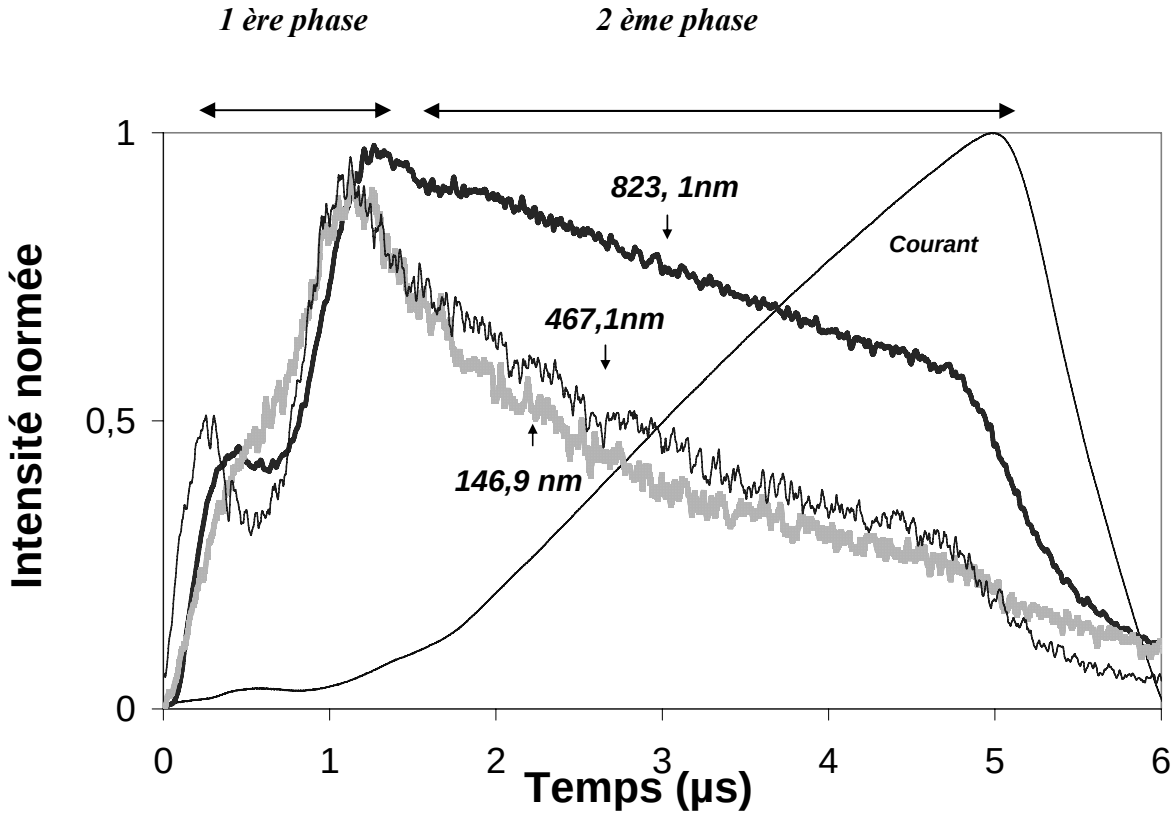


Figure 30: allure du courant et des rayonnements VUV, Visible et IR du xénon. Décharge 50 mbar 99% néon- 1% xénon. Durée d'impulsion : 5µs. Fréquence : 1.2kHz.Tension appliquée : 1 kV.

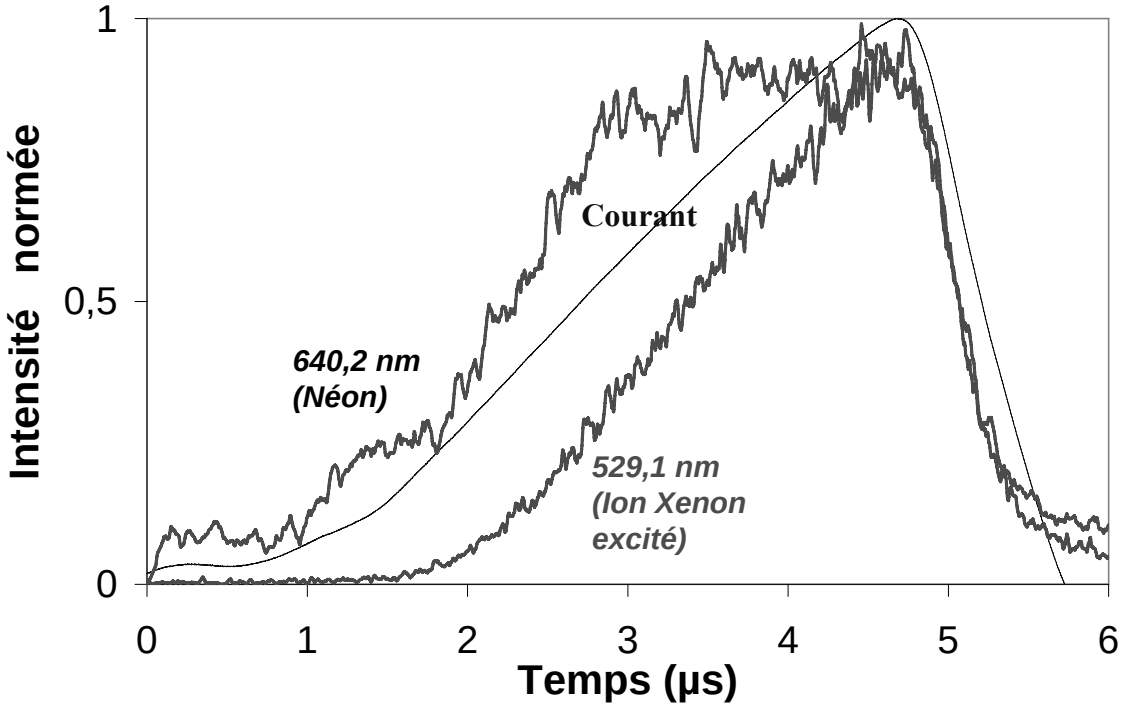


Figure 31: Emission à 640.2 nm (par le néon neutre) et émission 529.1 nm (par l'ion xénon). Décharge 50 mbar 99% néon- 1% xénon. Durée d'impulsion : 5µs. Fréquence : 1.2kHz. Tension appliquée : 1 kV.

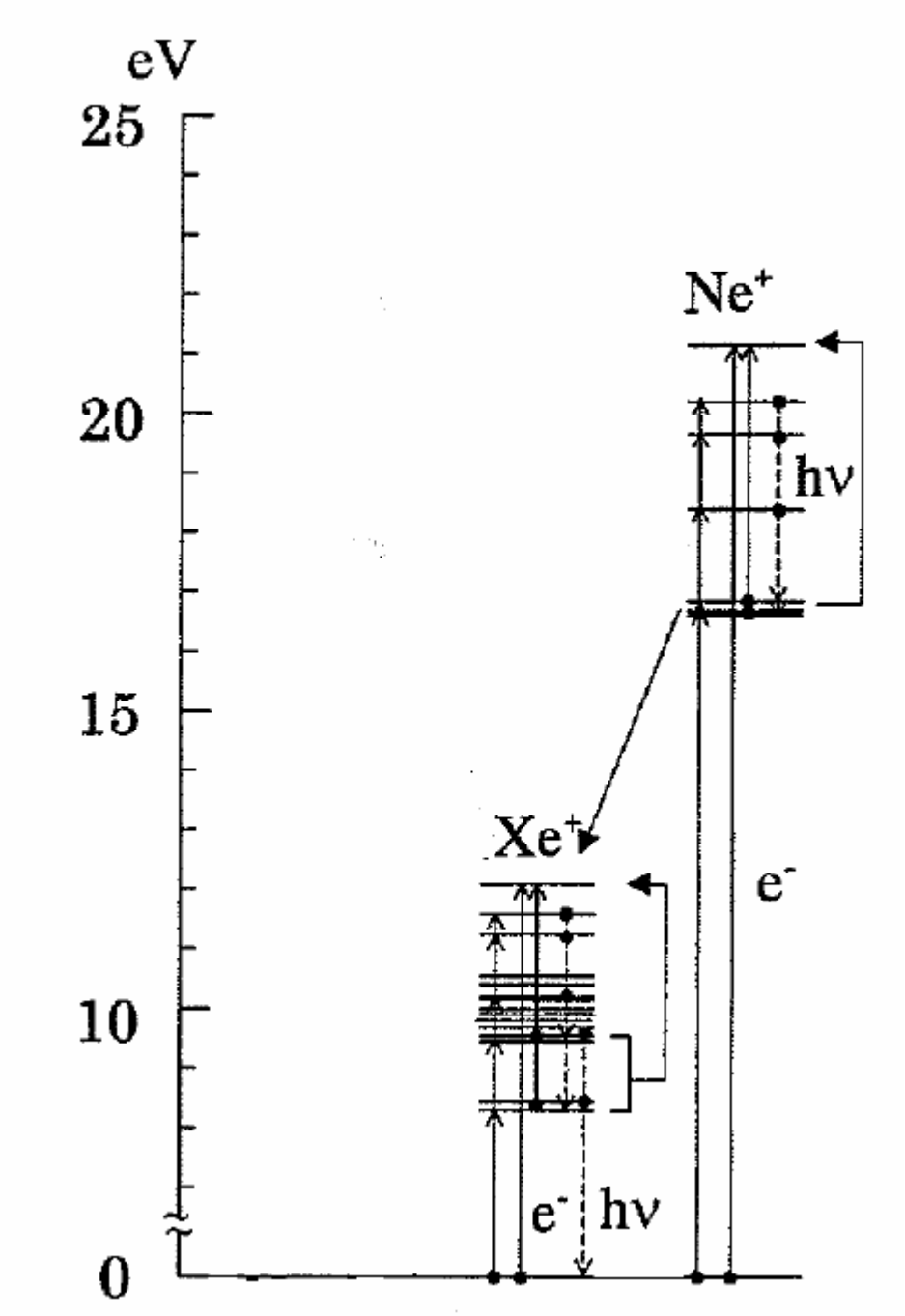


Figure 32: diagramme d'énergie du xénon et du néon (adaptée de source protégée:[Uch_1999]. Flèches pleines : excitation par collision électronique. Flèches discontinues : transition radiative.

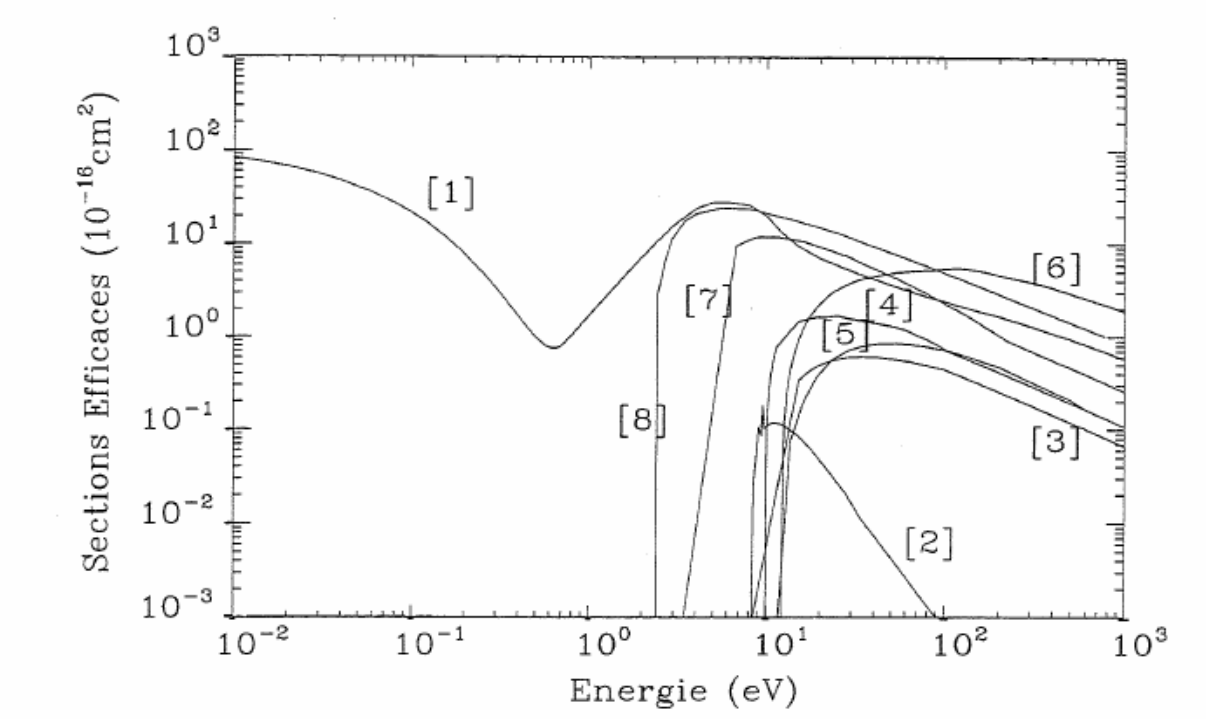


Figure 33: sections efficaces de collision électrons-atomes pour le xénon [Hir_1997]. [1] transfert de quantité de mouvement, [2] excitation $^3P_2$, [3] excitation $^3P_1$, [4] excitation Xe, [5] excitation Xe***, [6] ionisation directe, [7] et [8] ionisation à partir des niveaux $^3P_2$ et Xe**.** Source protégée.

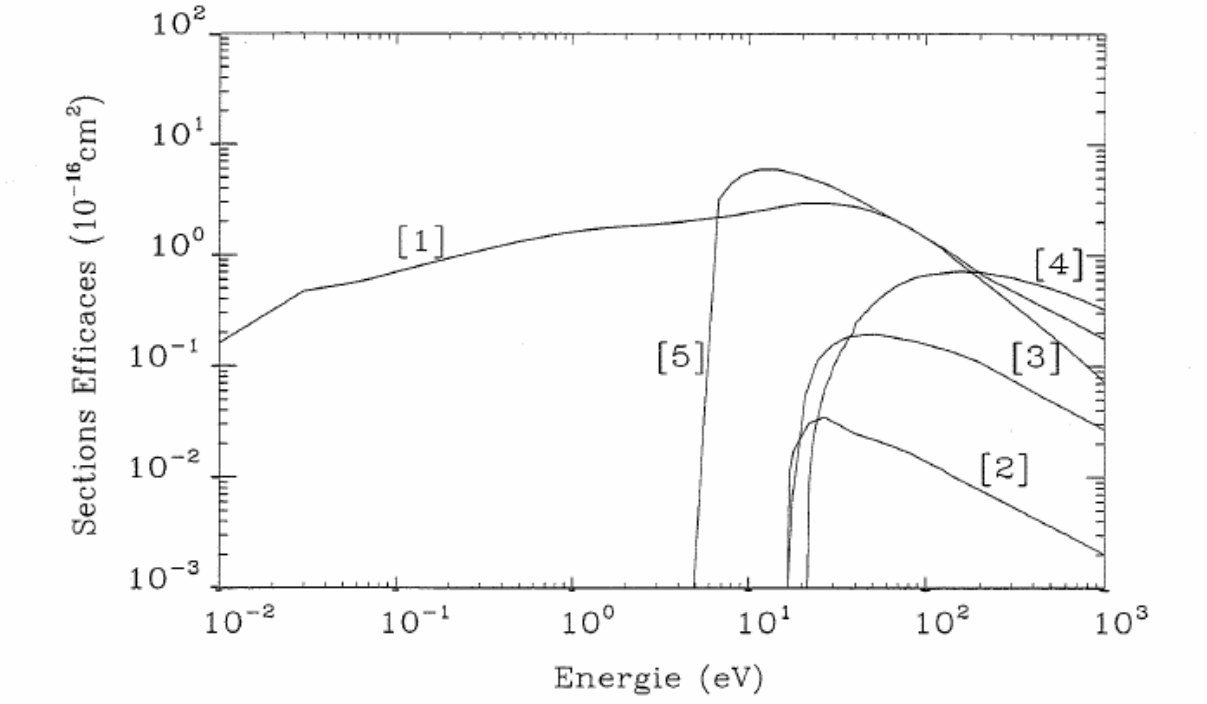


Figure 34: sections efficaces de collision électrons-atomes pour le néon [Hir_1997]. [1] transfert de quantité de mouvement, [2] excitation des niveaux $^3P_{2,0}$, [3] excitation de la somme des autres niveaux, [4] ionisation directe, [5] ionisation à partir des niveaux métastables. Source protégée.

2. Post-décharge

a) Observations expérimentales

A la fin de l'impulsion de tension, une émission post-décharge relativement longue (quelques centaines de microsecondes) a été observée sur les raies du xénon. Cette émission traduit le repeuplement puis la relaxation des niveaux excités du xénon. Ce repeuplement des niveaux est la conséquence d'une recombinaison électrons-ions. En effet, les ions, après avoir récupéré un électron, se retrouve à l'état de neutres excités qui vont conduire à la production d'un rayonnement en se désexcitant. Les observations montrent que le rapport du flux post-décharge par rapport au flux au cours de la décharge est beaucoup plus important dans le VUV qu'à d'autres longueurs d'ondes (figure 35).

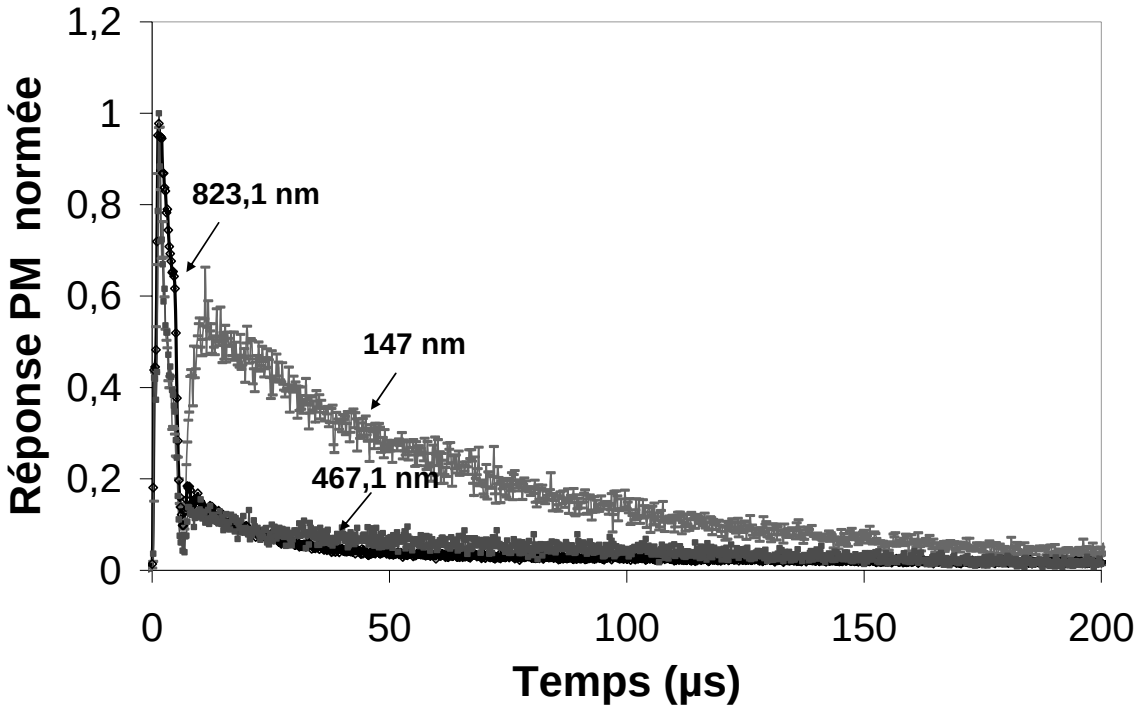


Figure 35: émission lumineuse post-décharge en fonction du temps pour 3 longueurs d'ondes. Réponse normée sur le maximum atteint pendant la décharge. Décharge 99% néon- 1% xénon. Pression de mélange : 50mbar. Durée d'impulsion : 5µs. Fréquence : 1.2kHz. Tension appliquée : 1 kV.

b) Modélisation

- ***Réactions et système d'équations***

On a cherché à identifier les principales réactions impliquées dans la production de VUV dans la phase de post-décharge, afin de réaliser un modèle simplifié permettant de comprendre les données expérimentales. De nombreux travaux de modélisation ont déjà été menés dans le domaine des décharges en gaz rares : en particulier, dans les travaux de Golubovskii *et al* sur les décharges pulsées (durée d'impulsion : 100µs) en He-Xe basse pression (2.5 Torr He, 0.05 Torr Xe) [Gol_2003], alliant observations expérimentales et modélisation, il a été montré que le profil temporel de la densité du premier niveau résonant du xénon décroît de façon monotone en post-décharge: la densité de ce niveau, après extinction de l'excitation électrique, s'annule ainsi rapidement (environ 20 µs après extinction du signal d'excitation), et les pertes de charges sont supposées se faire par la diffusion ambipolaire. Par contre, un peuplement post-décharge significatif est observé pour les expériences menées en xénon pur à une pression de 10 Torr. A cette pression en xénon pur, une forte contraction de la décharge est observée, conduisant à des densités électroniques importantes. Pour les auteurs, l'émission de post-décharge provient d'un repeuplement du Xe* issue de recombinaisons électrons ions dans le plasma. Compte tenue de la forte densité électronique ($10^{14} cm^{-3}$), il leur apparaît que ces recombinaisons peuvent être de deux types : collisionnelles-radiatives ou dissociatives, selon la valeur de la température électronique. Cependant, lorsque la densité électronique reste faible (de l'ordre de 1.10^{11} cm^{-3}), et pour des pressions de quelques dizaines de mbar, il est communément admis que la recombinaison dissociative impliquant des ions moléculaires est le phénomène qui domine les processus de pertes électroniques [Kas_1968].

Nous avons cherché à savoir, à l'aide d'un modèle simplifié, quels processus, dans notre cas particulier de décharge Ne-Xe pulsée en tube à cathodes froides, étaient prépondérants dans la production post-décharge de Xe*, et donc de rayonnement VUV. Nous avons considéré trois grands types de processus: les processus de *recombinaisons électrons-ions*, les processus de *productions d'ions atomiques* et les processus de *production d'ions moléculaires*. On va s'intéresser plus en détails dans ce qui suit à ces processus. Le tableau 4 récapitule les réactions choisies.

Les *réactions de recombinaisons* retenues proviennent en partie de la littérature déjà annoncée: les réactions de recombinaisons de Xe_2^+ (R9 ; dissociative) et de Xe^+ (R11 ; collisionnelle-radiative) ont été extraites de [Gol_2003]. Comme nous travaillons dans un mélange constitué à 99% de néon, il est apparu opportun de retenir également la réaction R10 de recombinaison dissociative de $NeXe^+$ [Min_2000]. On notera que toutes ces réactions dépendent de la valeur prise par la température électronique. Nous avons donc, comme on le verra, imposé une estimation raisonnable de la valeur et de l'évolution de la température électronique au cours de la post-décharge, en se basant sur les résultats de [Gol_2003]. Nous verrons, d'après les résultats du modèle, que l'influence de la réaction de recombinaison collisionnelle-radiative est insignifiante dans nos conditions expérimentales.

Nous venons de préciser les réactions de recombinaisons électrons-ions susceptibles de mener au repeuplement post-décharge des niveaux d'énergie du xénon. Naturellement, au préalable, ces réactions nécessitent la présence d'ions atomiques et moléculaires. Une certaine densité de ces ions est crée en phase de décharge. Cependant, nous avons constaté qu'il n'était pas suffisant, pour comprendre les observations expérimentales, de considérer des processus de recombinaisons d'ions seulement à partir d'une densité initiales de ces ions sans prendre en compte un renouvellement des espèces ioniques pendant la phase de post-décharge. Nous

avons donc cherché à savoir quelles réactions pouvaient avoir de l'importance dans le processus de formation des ions en phase de post-décharge.

Concernant les ions atomiques, en phase de post-décharge, ils ne peuvent pas être produits par des phénomènes de collisions directes avec des électrons énergétiques, comme c'est le cas aux premiers instants de la décharge. Nous avons donc considéré, comme *processus de productions d'ions atomiques*, un effet Penning (R1) ainsi que la conversion ionique (R6) et (R8) des ions moléculaires, étant donné les valeurs relativement fortes des coefficients de réactions.

Le *processus de formation d'ions moléculaires* est quant à lui possible via des réactions à trois corps, surtout celles impliquant le néon (R4 et R5). La réaction de formation de Xe_2^+ à partir du Xe uniquement (R3) est nettement minoritaire devant la réaction (R4), et n'a pas de réelle incidence sur la densité de Xe_2^+ . Elle pourrait être négligée. Au cours du développement du modèle, il est par contre apparu utile d'intégrer la réaction (R7) de conversion de $NeXe^+$ vers Xe_2^+ et la réaction (R2) de formation de $NeXe^+$ à partir de Ne^*, qui ont une influence sur la densité de $NeXe^+$.

Enfin, on pourra noter que l'ordre de grandeur choisi pour le coefficient de la réaction (R12) est typique des valeurs trouvées dans divers travaux de la littérature traitant des décharges dans le xénon. Cet ordre de grandeur tient compte de l'emprisonnement résonant de la raie à 147 nm.

Tableau 4: principales réactions entrant en jeu dans le repeuplement de Xe ($1s_4$).

#	Réaction	Coefficient de réaction	Réf.
	Ionisations par le néon excité		
R1	$Xe + Ne^* \rightarrow Xe^+ + Ne + e$	$k1 = 7{,}5 \times 10^{-11} cm^3.s^{-1}$	[Ney_1979]
R2	$Xe + Ne^* \rightarrow NeXe^+ + e$	$k2 = 2{,}3 \times 10^{-11} cm^3.s^{-1}$	[Ney_1979]
	Conversions ioniques		
R3	$Xe^+ + 2Xe \rightarrow Xe_2^+ + Xe$	$k3 = 2{,}0 \times 10^{-31} cm^6.s^{-1}$	[Eck_1988]
R4	$Xe^+ + Xe + Ne \rightarrow Xe_2^+ + Ne$	$k4 = 1{,}5 \times 10^{-31} cm^6.s^{-1}$	[Lev_1985]
R5	$Xe^+ + 2Ne \rightarrow NeXe^+ + Ne$	$k5 = 1{,}5 \times 10^{-31} cm^6.s^{-1}$	[Lev_1985]
R6	$NeXe^+ + Xe \rightarrow Xe^+ + Ne + Xe$	$k6 = 5{,}0 \times 10^{-10} cm^3.s^{-1}$	[Meu_1995]
R7	$NeXe^+ + Xe \rightarrow Xe_2^+ + Ne$	$k7 = 5{,}0 \times 10^{-12} cm^3.s^{-1}$	[Meu_1995]
R8	$Xe_2^+ + e \rightarrow Xe^+ + Xe + e$	$k8 = 1{,}0 \times 10^{-7} cm^3.s^{-1}$	[Eck_1988]
	Recombinaisons		
R9	$Xe_2^+ + e \rightarrow (Xe_2^*)_{instable} \rightarrow Xe^* + Xe$	$k9 = 2{,}3 \times 10^{-6} \times Te^{-0.7} cm^6.s^{-1}$	[Gol_2003]
R10	$NeXe^+ + e \rightarrow Xe^* + Ne$	$k10 = 2 \times 10^{-7} \times Te^{-0.5} cm^6.s^{-1}$	[Min_2000]
R11	$Xe^+ + 2e \rightarrow Xe^* + e$	$k11 = 2 \times 10^{-27} \times Te^{-4,5} cm^6.s^{-1}$	[Gol_2003]
	Emission		
R12	$Xe^* \rightarrow Xe + photon$	$k12 = \sim 10^5 \ s^{-1}$	[Gol_2003]

On présente ci-dessous le système d'équations différentielles couplées qui a été codé. On notera que la cascade radiative susceptible de peupler Xe($1s_4$) depuis les niveaux 2p repeuplés n'est pas prise en compte.

$$\frac{d[Xe*]}{dt} = k9.[Xe_2^+][e] + k10.[NeXe^+][e] + k11.[Xe^+][e]^2 - k12.[Xe*]. \quad \text{E1}$$

$$\frac{d[Ne*]}{dt} = -(k1+k2).[Ne*][Xe]. \quad \text{E2}$$

$$\frac{d[e]}{dt} = (k1+k2).[Ne*][Xe] - k9.[Xe_2^+][e] - k10.[NeXe^+][e] - k11.[Xe^+][e]^2. \quad \text{E3}$$

$$\frac{d[Xe^+]}{dt} = k1.[Ne*][Xe] + k8.[Xe_2^+][e] + k6.[NeXe^+][Xe] - k11.[Xe^+][e]^2 - k3.[Xe^+][Xe]^2 - k4.[Xe^+][Xe][Ne] - k5.[Xe^+][Ne]^2. \quad \text{E4}$$

$$\frac{d[Xe_2^+]}{dt} = k3.[Xe^+][Xe]^2 + k4.[Xe^+][Xe][Ne] + k7.[NeXe^+][Xe] - (k8+k9).[Xe_2^+][e]. \quad \text{E5}$$

$$\frac{d[NeXe^+]}{dt} = k5.[Xe^+][Ne]^2 + k2.[Ne*][Xe] - (k6+k7).[NeXe^+][Xe] - k10.[NeXe^+][e]. \quad \text{E6}$$

- ***Hypothèses***

La valeur de la température électronique dans le temps est un paramètre important dans l'évolution de la recombinaison dissociative (voir taux des réactions R9 et R10). L'évolution de cette température peut être calculée. Un calcul de ce type a été publié [Gol_2003] pour une décharge en xénon pur. Grossièrement, la température électronique y chute brutalement dès l'extinction de la tension durant les 20 premières microsecondes, avant d'entamer une phase de décroissance plus douce. On a donc choisi, en s'inspirant de ces travaux, d'imposer à la température une allure constituée d'une chute brutale à l'extinction du pulse, puis d'une décroissance très progressive durant le reste de la post-décharge (figure 36) qui tend vers l'énergie d'agitation thermique (40 meV environ à 300K). Compte tenu du type de décharge que l'on étudie, on suppose que la température électronique à la fin de l'impulsion s'élève au maximum à quelques eV. Le calcul a donc été effectué pour une valeur initiale (la valeur initiale étant définie comme la fin de l'impulsion) de 0.5 eV (Te1) et de 1eV (Te2). Dans les deux cas, la température électronique à t=100µs correspond à 10% de la valeur initiale. On notera que l'objet ici n'est pas de décrire précisément l'évolution de la température électronique mais de vérifier si, avec une estimation de celle-ci, le modèle simplifié permet de produire des allures de peuplement de Xe* compatibles avec les courbes expérimentales du rayonnement VUV.

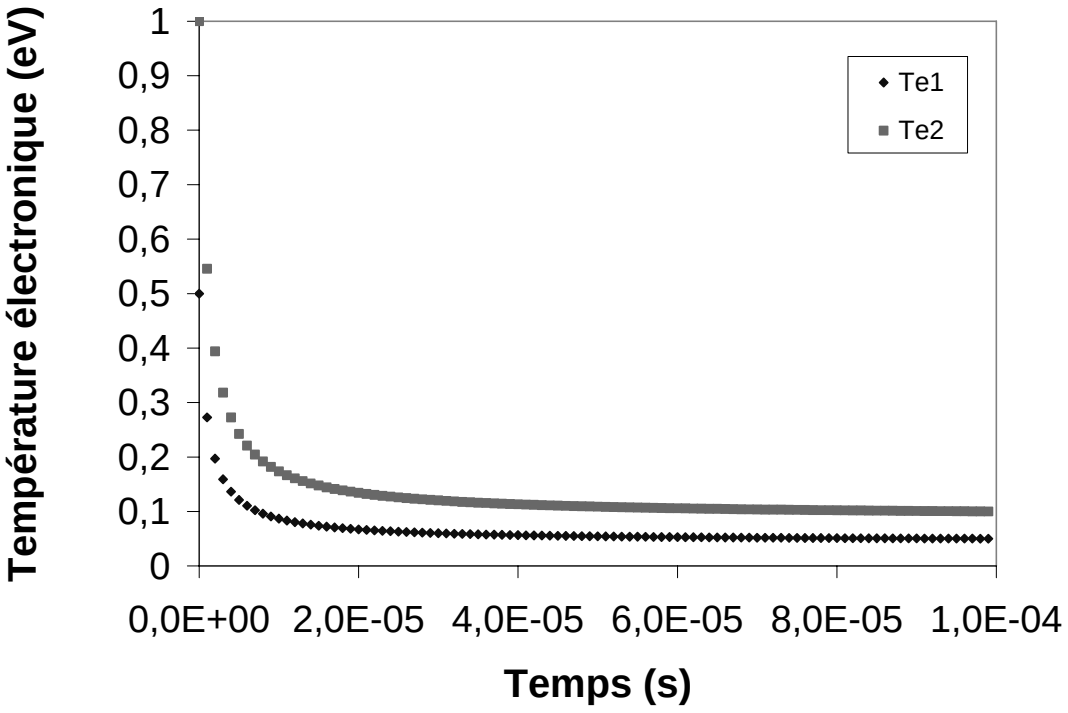


Figure 36: courbes arbitraires d'évolution de la température électronique post-décharge pour une valeur initiale de 1 eV et une valeur initiale de 0.5 eV.

- ***Résultats de la modélisation***

En utilisant les profils temporels de température électronique présentés précédemment, on simule le peuplement post-décharge de Xe($1s_4$) à partir des équations couplées présentées. Moyennant un ajustement des densités initiales (en début de post-décharge), le résultat est en assez bon accord avec le comportement du rayonnement VUV obtenu expérimentalement à 50 mbar (figure 37). On notera que l'écart augmente aux temps longs, ce qui correspond sans doute à une divergence dans l'évolution de la température électronique simulée et l'évolution réelle aux temps longs. Le tableau 5 récapitule les valeurs des densités des différentes espèces qui ont permis d'obtenir le meilleur accord avec les données expérimentales. Ces valeurs paraissent à priori compatibles avec les ordres de grandeurs des décharges luminescentes. On notera que la vitesse de chute de la température électronique est un paramètre important dans l'évolution de l'émission VUV post-décharge, et notamment sur l'instant où le maximum est atteint. La diminution de la vitesse de chute de la température aura ainsi tendance à décaler l'apparition du maximum d'émission post-décharge dans le temps.

La figure 38 présente le résultat fourni par le modèle en prenant en compte ou pas la recombinaison collisionnelle-radiative. Les paramètres initiaux sont ceux de la première ligne du tableau 5. On voit que, dans les conditions appliquées, la présence ou l'absence du processus de recombinaison collisionnelle-radiative ne modifie pas le peuplement de Xe* , ce qui indique que, dans nos conditions expérimentales, la recombinaison dissociative des ions moléculaires est prépondérante dans le repeuplement de Xe*.

Tableau 5 : densités initiales choisies pour les espèces intervenant dans le modèle selon la température initiale.

Espèce	*Ne*	*Xe*	*e*	*Xe+*	*Ne**	*Xe**	Xe_2^+	$NeXe^+$
Densité (cm^{-3}) Te1	*12e17 (soit 49 mbar)*	*0.25e17 (soit 1 mbar)*	*6e11*	*6e11*	*1e10*	*1.6e10*	*1e9*	*1e9*
Densité (cm^{-3}) Te2	*12e17 (soit 49 mbar)*	*0.25e17 (soit 1 mbar)*	*6.5e11*	*6.5e11*	*1e10*	*1.6e10*	*1e9*	*1e9*

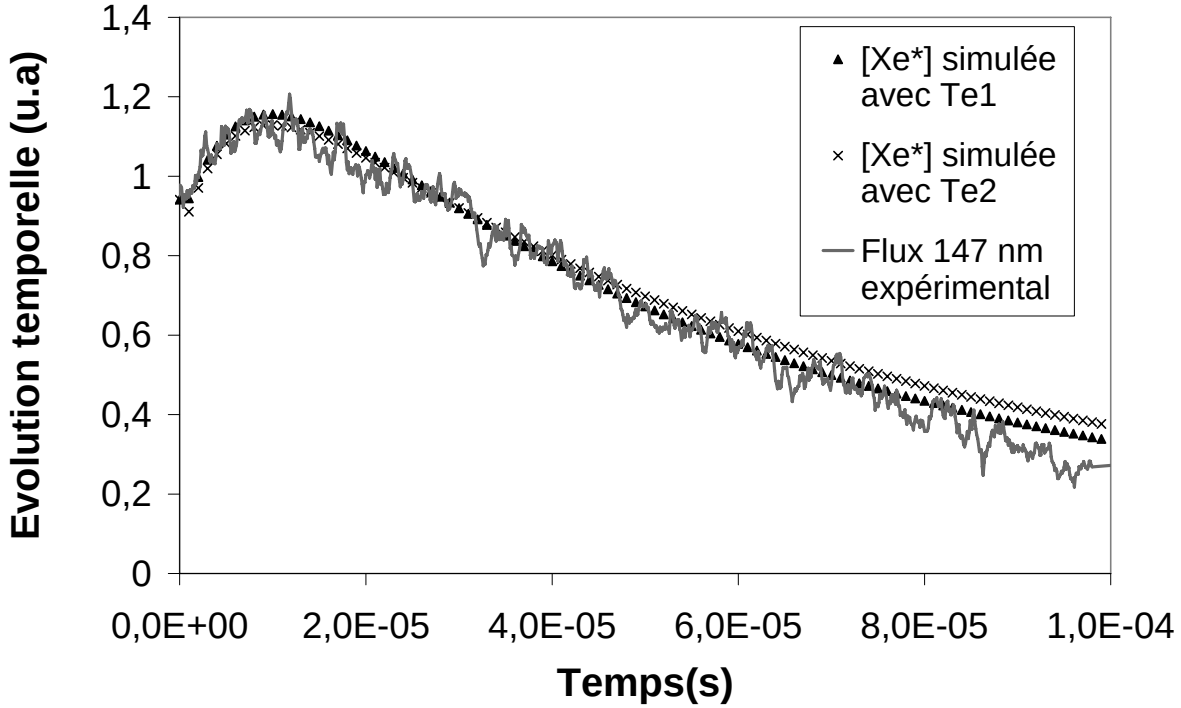


Figure 37: évolution de la densité de Xe(1s4) dans le temps comparée à l'évolution du flux VUV expérimental (décharge 99% néon-1% xénon à 50 mbar, durée d'impulsion : 5µs) à 147 nm.

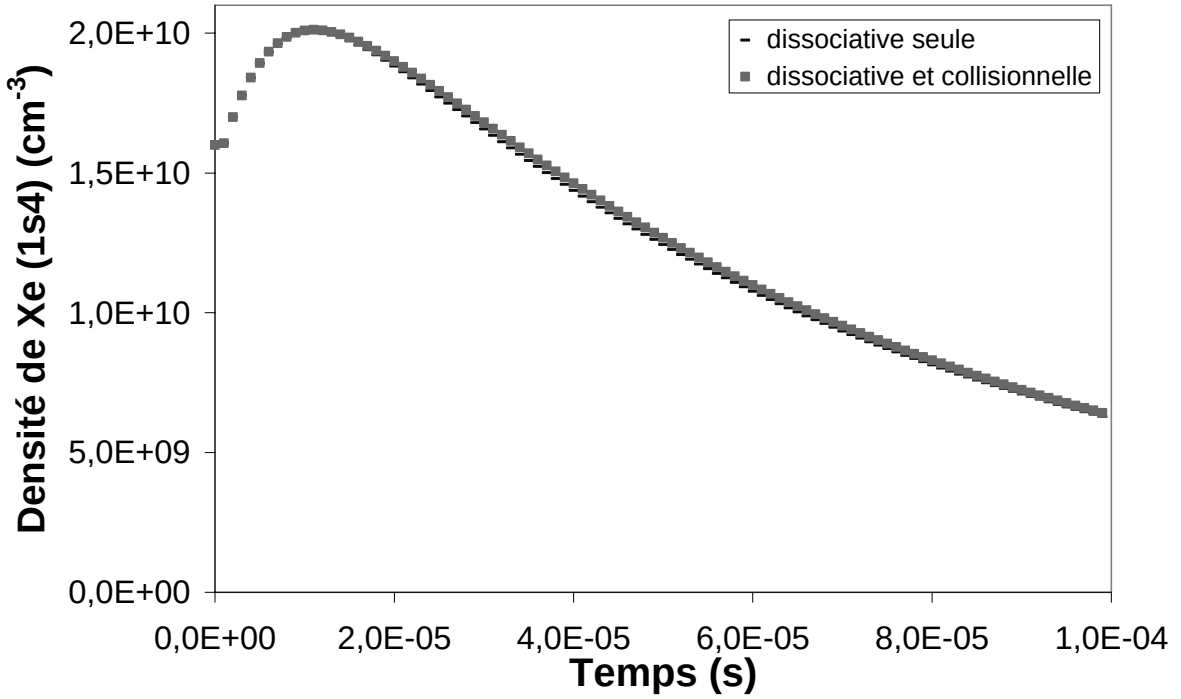


Figure 38: évolution de la densité de Xe(1s4) en prenant en compte la recombinaison dissociative seule ou ajoutée à la recombinaison collisionnelle radiative.

C. Conclusion du chapitre

Dans ce chapitre, on a pu mettre en évidence quelques points fondamentaux dans la description des mécanismes de production du VUV atomique par le plasma impulsionnel de néon-xénon. D'après les mesures de spectroscopie VUV, visible, et IR résolues en temps, le rayonnement du plasma augmente très rapidement après l'application de l'impulsion de tension. L'existence d'une densité résiduelle d'électrons non recombinés permet en effet à l'impulsion d'arriver dans un milieu non isolant, ce qui facilite l'établissement rapide d'un courant et le peuplement de niveaux d'énergie des neutres. On observe que l'augmentation du courant au cours de l'impulsion s'accompagne cependant d'une chute de la production de VUV, traduisant certainement un dépeuplement de Xe^* au profit de la production d'ions.

Cependant, à partir de ces ions, des réactions efficaces entraînent la production d'ions moléculaires, $NeXe^+$ et Xe_2^+. Ces réactions impliquent fortement le néon neutre à l'état fondamental. Un modèle simplifié sous scilab montre clairement que la recombinaison dissociatives de ces ions moléculaires permet de produire un peuplement post-décharge du niveau résonant $Xe(1s_4)$ dont l'évolution est compatible avec les enregistrement post-décharge de la raie à 147 nm traduisant la désexcitation sur le fondamental de ce niveau.

IV. Etudes paramétriques

Ce quatrième chapitre présente les résultats des études paramétriques menées sur les enseignes en néon-xénon excitées en régime impulsionnel. Les propriétés radiatives seront discutées en fonction des spécificités du mélange et des caractéristiques de l'excitation. Des études de vieillissement seront également décrites.

A. Evolution des propriétés radiatives avec la pression

Le modèle présenté dans le chapitre précédent nous a confirmé le rôle, sur la production de VUV post-décharge, de la recombinaison dissociative d'ions moléculaires dont la formation fait fortement intervenir la densité des neutres, et plus spécifiquement du néon. Cette partie se propose maintenant de caractériser expérimentalement la production du VUV, en période de décharge et en période de post-décharge, en fonction des pressions, partielles et totales.

1. Influence de la pression partielle de néon

Les mesures de spectroscopie suivantes, réalisées dans une décharge néon-xénon pour une pression partielle de xénon fixe (1 mbar) et une pression partielle de néon variant de 0 à 70 mbar, ont mis en évidence expérimentalement le rôle du néon dans la production de rayonnement VUV. On remarque d'abord que l'émission post-décharge en xénon pur (figure 39) est uniquement constituée d'une décroissance monotone : en effet, à basse pression, la perte des charges se fait essentiellement par diffusion ambipolaire, et les états excités du xénon se dépeuplent de façon monotone par le biais des désexcitations radiatives ou de la diffusion des métastables aux parois. Pour des pressions de néon non nulles, on observe l'augmentation du flux VUV enregistré au cours de la décharge et l'apparition d'une émission significative de lumière VUV post-décharge. On voit sur la figure 39 l'exemple d'une décharge dans un mélange contenant 49 mbar de néon et 1mbar de xénon. A partir des profils temporels obtenus, on détermine l'évolution de la quantité de lumière VUV totale en fonction de la pression partielle de néon. Cette évolution apparaît proportionnelle à la pression partielle de néon (figure 40) sur la gamme étudiée. Ceci montre l'intérêt d'utiliser des mélanges contenant une forte pression partielle de néon, afin de favoriser les réactions conduisant à la production de VUV. Comme on va le voir, la valeur de la pression partielle de xénon influence cependant significativement la valeur limite de la pression de mélange.

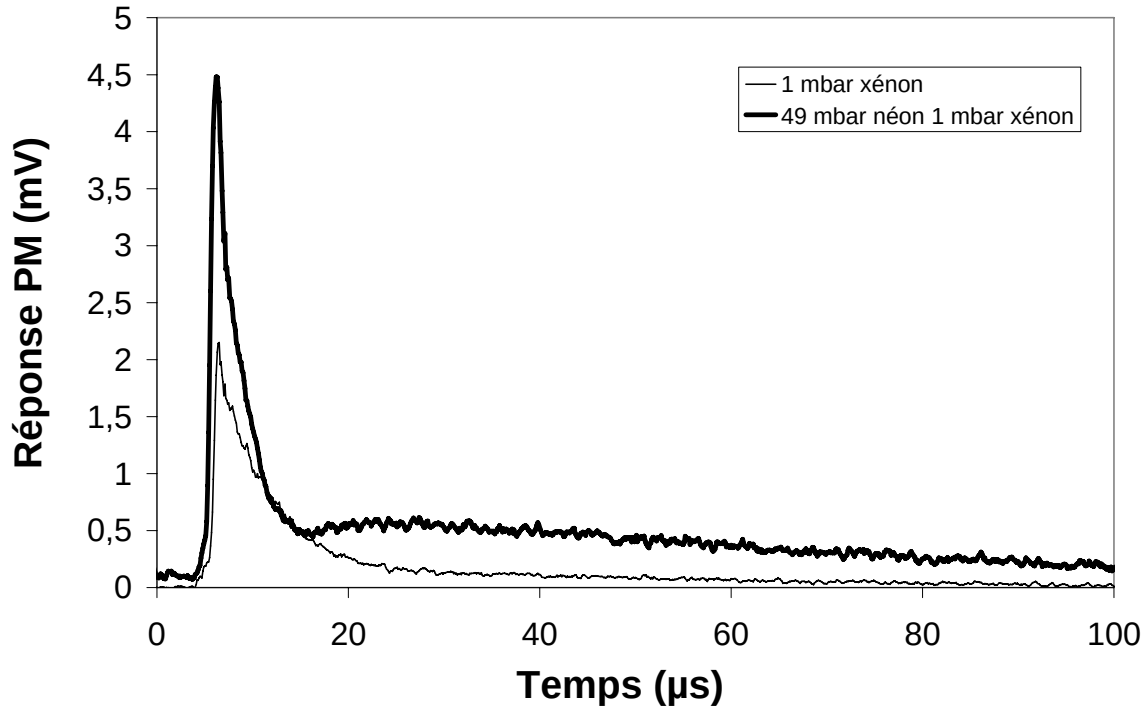


Figure 39: flux VUV dans le cas d'une décharge pulsée en xénon pur et en mélange néon-xénon. Durée d'impulsion : 2µs. Puissance prise : 65 W. Tension appliquée : 1 kV.

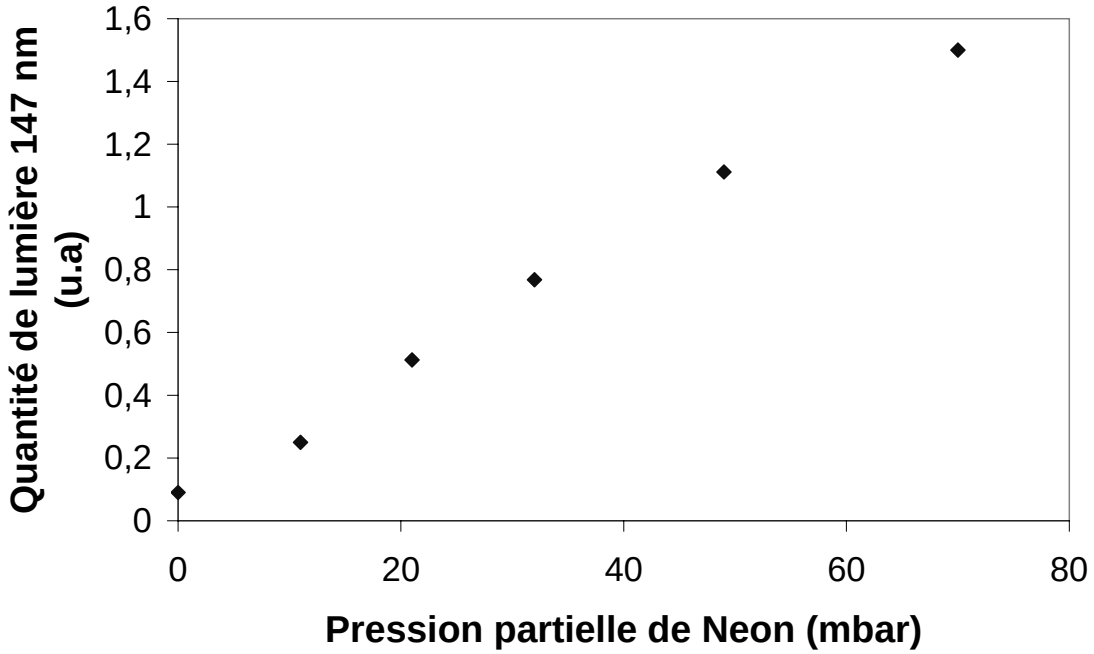


Figure 40: évolution de la quantité de lumière VUV selon la pression partielle de néon dans le cas d'une décharge néon-xénon pulsée contenant 1mbar de xénon. Durée d'impulsion : 2µs. Puissance prise : 65 W. Tension appliquée : 1 kV.

2. Influence de la pression partielle de xénon

On s'intéresse maintenant à l'influence de la pression partielle de xénon. Le relevé systématique des coordonnées chromatiques (tableau 6) au luxmètre a montré que leurs valeurs se rapprochent des valeurs de références (obtenues avec le mélange Ar/Ne/Hg en excitation classique) lorsque la pression partielle de xénon augmente. Pour les très faibles valeurs de pressions partielles de xénon, la couleur dérive nettement vers le jaune, ce qui traduit la diminution du quenching de *Ne** par *Xe* et une augmentation du taux de désexcitation de *Ne** par transitions radiatives.

Tableau 6: coordonnées chromatiques (+-0.005) en fonction de la pression partielle de xénon. Pression de mélange : 30 mbar.

Mélange	***X***	***Y***
Ar/Ne/Hg (valeurs de références)	*0.240*	*0.615*
Ne- Xe (0.05 mbar Xe)	*0.310*	*0.532*
Ne-Xe (0.1 mbar Xe)	*0.280*	*0.563*
Ne-Xe (0.5 mbar Xe)	*0.270*	*0.574*
Ne-Xe (1 mbar Xe)	*0.260*	*0.575*

Cependant, on observe une diminution de l'émission du luminophore lorsque le pourcentage de xénon dans le mélange binaire augmente (figure 41), en même temps qu'une contraction progressive de la décharge sur son axe. Par ailleurs, on note un abaissement de

la valeur limite de la pression de mélange (au-delà de laquelle la décharge s'éteint) lorsque le pourcentage de xénon augmente : pour la tension et la puissance électrique considérées dans cette expérience, la décharge s'éteint vers 20 mbar pour le mélange contenant 20% de xénon et vers 80 mbar pour le mélange contenant 5% de xénon, ce qui dans les deux cas correspond à une pression partielle de xénon de 4mbar environ. Ces observations sont cohérentes avec le fait que le couple xenon-électrode (en fer-nickel activée au BaF_2) possède un coefficient d'émission secondaire plus faible (de trois ordres de grandeur) que le couple néon-électrode (fer-nickel / BaF_2), ce qui nuit à l'émission secondaire et à l'auto-entretien de la décharge. On notera qu'il est possible de repousser cette valeur limite de pression en augmentant par exemple la tension appliquée aux bornes du tube.

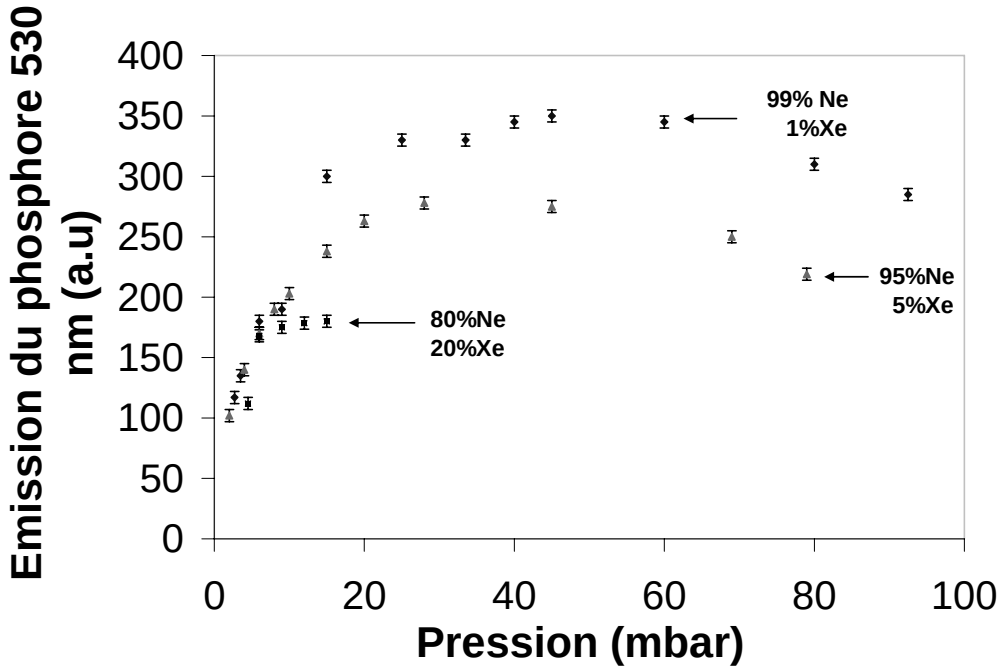


Figure 41: réponse du luminophore en fonction de la proportion de xénon dans le mélange néon-xénon et de la pression totale. Spectromètre à fibre. Tension : 1kV. Puissance prise : 45 W.

Le pourcentage de xénon dans le mélange doit donc être suffisamment élevé pour assurer le quenching de Ne*, sans compromettre pour autant le fonctionnement de la décharge pour des pressions de plusieurs dizaines de mbar. Ceci plaide en faveur de mélange contenant quelques pourcents de xénon seulement.

3. Etude d'un mélange 99%néon-1%xénon

La pression des neutres, et spécialement celle du néon, favorise, comme on l'a montré, la production de VUV. En outre, le fonctionnement de la décharge est optimal pour un faible pourcentage de xénon. Cela nous conduit à vouloir caractériser, selon la pression, la production de rayonnement VUV d'une décharge pulsée faite dans un mélange Penning contenant une proportion fixe de 99% de néon et de 1% de xénon. On s'intéressera également à la réponse du luminophore à l'excitation VUV.

a) Sources de rayonnement VUV

Nous avons cherché à connaître les différentes sources possibles de production d'ultraviolet du vide en fonction de la pression. Ces sources peuvent à priori être le xénon atomique mais également des molécules de type $NeXe^*$ *ou* Xe_2^***.** Comme on va le voir, nous avons montré que le rayonnement VUV d'origine moléculaire est presque absent dans la décharge, et que le rayonnement atomique reste ainsi majoritaire sur toute la gamme de pression étudiée.

- ***Excimère*** Xe_2^*

Les décharges électriques dans les gaz rares peuvent donner, moyennant des valeurs de pressions de mélange suffisantes, naissance à des émissions de continus. Ces continus traduisent la présence de molécules de gaz rares excitées, appelées excimères, dont une courbe de potentiel typique est donnée par la figure 42. Des transitions radiatives entre les états excités de la molécule et l'état fondamental sont possibles et forment les continus. Dans le cas du xénon (Xe_2^*), le premier continu s'étend de 150nm à 210 nm. Le second continu est quant à lui centré sur 173 nm environ.

Une large fenêtre du spectre VUV (110-200 nm) a donc été balayée au moyen du spectromètre principal. La plage de pressions étudiée s'étend de 10 à 100 mbar. Le rayonnement dominant, dans cette plage de pression et sur la bande 110-200 nm, est la raie du xénon atomique à 147 nm. A titre d'illustration, la figure 43 présente le spectre de la décharge à 50 mbar de pression totale (soit 0.5 mbar de xénon). On ne constate pas d'émission de continu. On notera que le taux de réaction de formation de l'excimère Xe_2^* par réaction à trois corps faisant intervenir le néon (réaction majoritaire dans notre cas) est inférieur de près d'un ordre de grandeur au taux de réaction de formations de l'ion moléculaire Xe_2^+ [Meu_1995]. On rappelle ci-dessous les voies de formations de l' excimère Xe_2^* :

$$Xe^* + 2Xe \rightarrow Xe_2^* + Xe \qquad R13$$

$$Xe^* + Xe + Ne \rightarrow Xe_2^* + Ne \qquad R14$$

De plus, contrairement à la formation d'excimères, la formation des ions moléculaires fait intervenir l'ion de xénon atomique, dont la densité est à priori plus importante que la densité de Xe* mise en jeu dans R13 et R14. La densité d'ions importante et un taux de réaction plus fort causent certainement une prédominance de la formation de Xe_2^+ (par R4) sur celle de Xe_2^* (par R13), ce qui explique pourquoi la présence de Xe_2^+ peut être envisagée bien que l'on ne détecte pas Xe_2^*.

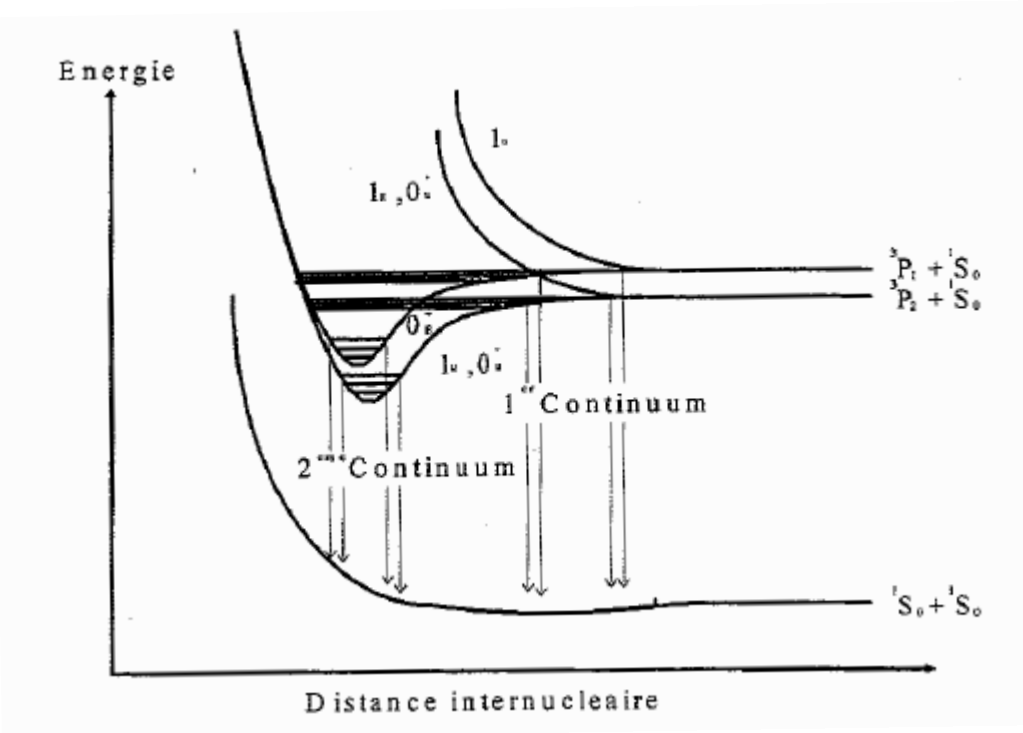


Figure 42: courbes de potentiels semi-qualitatives dans le cas de dimères de gaz neutres (source protégée :[Tis_1995])

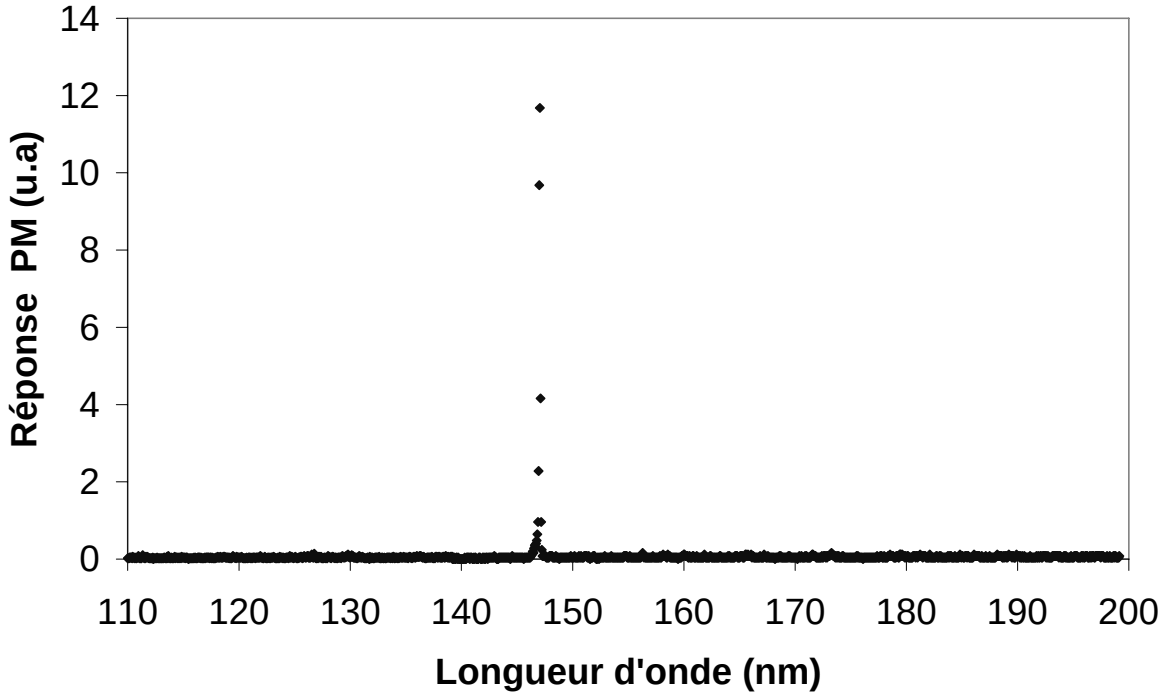


Figure 43: spectre de la décharge pulsée dans un mélange 99% néon-1% xénon sur la plage 110-200 nm. Pression de mélange : 50 mbar.

- ***Exciplexe NeXe****

L'allure spectrale de la raie à 147 nm (raie résonante du xénon atomique) a été acquise avec une résolution suffisante (R~500 à 147 nm) permettant de détecter une aile bleue (figure 44). Cette émission a été décrite comme la conséquence possible de transitions libre-libre et libre-liée au sein de l'exciplexe $NeXe^*$ [Mor_2003].

On a cherché à estimer la contribution relative de cette aile bleue à l'excitation du luminophore. L'émission à 10 mbar, que l'on a supposé être essentiellement d'origine atomique, a été choisie comme raie de référence. Le flux total correspondant à l'aile bleue et celui correspondant à l'émission atomique ont été calculés (figure 45). On voit que la contribution du rayonnement moléculaire augmente avec la pression, et atteint environ 10% à 50 mbar de pression de mélange et environ 15 % à 90 mbar. On notera que ce rayonnement moléculaire n'est pas susceptible de subir l'emprisonnement résonant comme c'est le cas pour la raie à 147 nm.

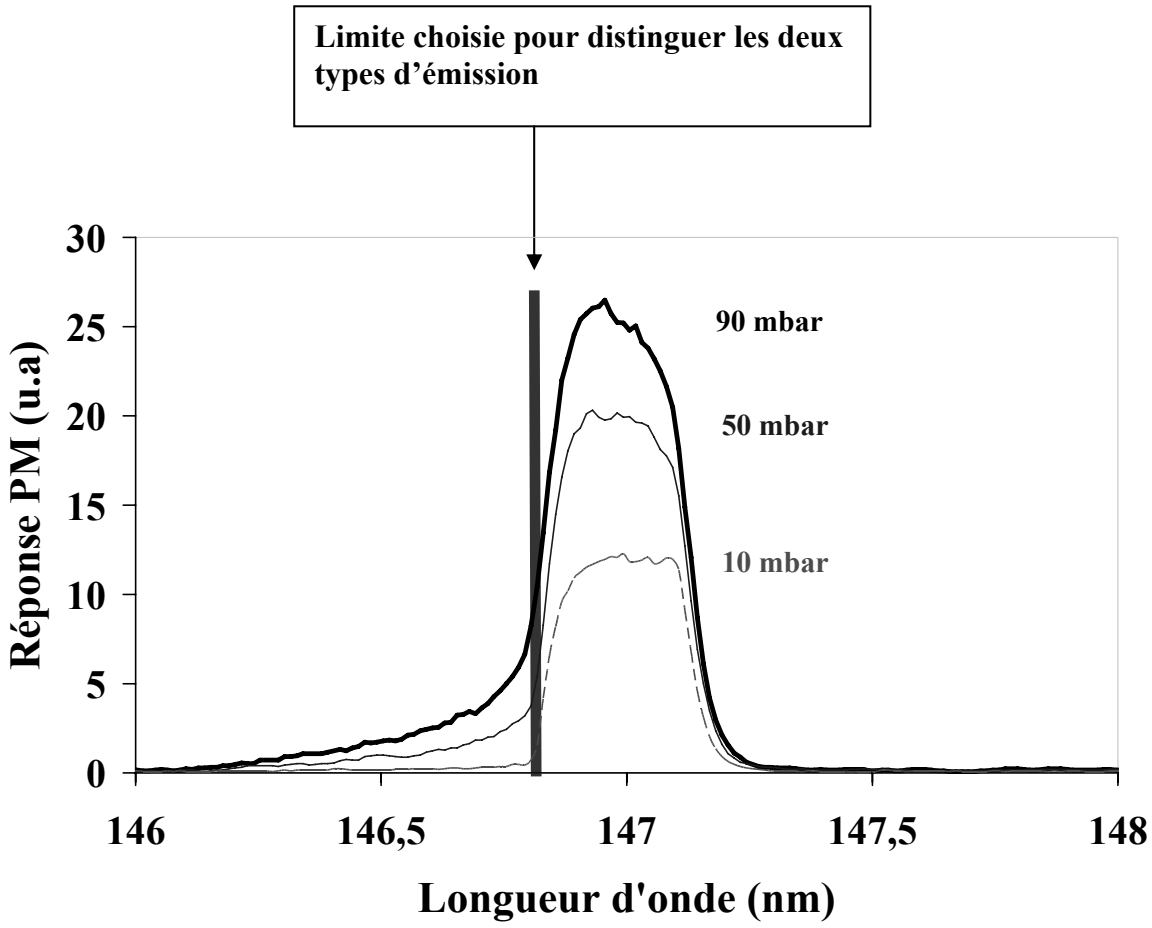


Figure 44: allure spectrale de la raie centrée sur 147 nm en fonction de la pression du mélange 99% néon -1% xénon. Mesure avec visée dans le plan du luminophore.

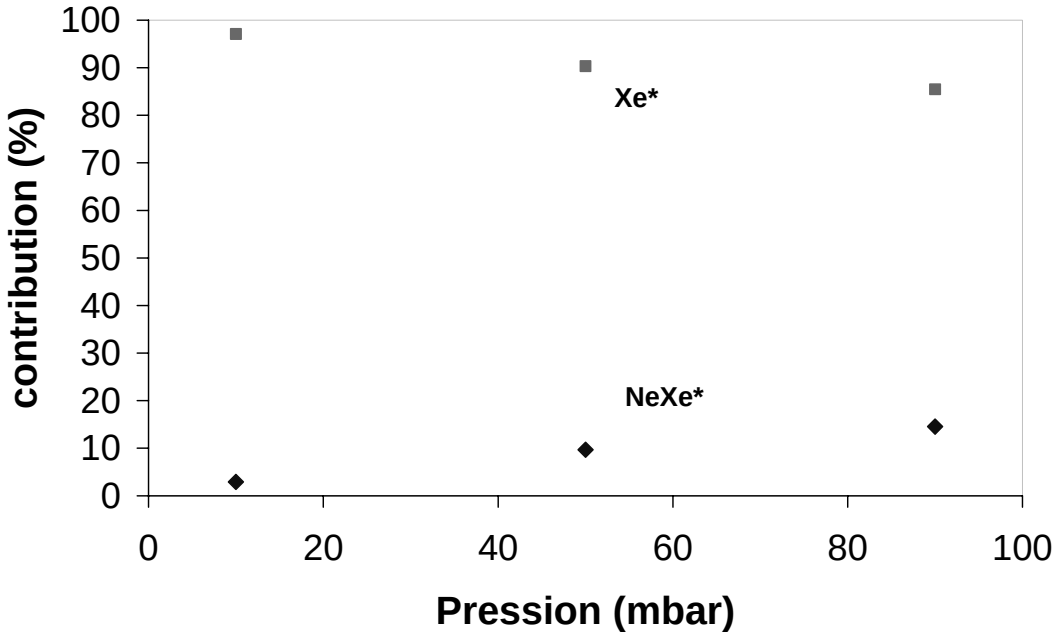


Figure 45: estimation du pourcentage du rayonnement atomique (provenant de la désexcitation de Xe ($1s_4$)) et du rayonnement moléculaire (transitions au sein de NeXe*) dans le flux VUV enregistré vers 147 nm selon la pression du mélange 99% néon -1% xénon .

- ***Evolution de la raie de résonance***

La raie du xénon centrée sur 147 nm est le rayonnement majoritaire émis par le plasma sur une plage allant de 110 à 200 nm. Cette raie est issue de la transition résonante $Xe(1s_4) \rightarrow Xe(1p_0)$. Elle est accompagnée, pour les plus fortes pressions de la gamme étudiée, d'une aile bleue issue de transitions entre les niveaux de l'exciplexe $NeXe^*$. L'évolution temporelle de la raie à 147 nm du xénon a été acquise en fonction de la pression du mélange 99% néon-1% xénon. Les valeurs de la quantité de VUV en fonction de la pression sont présentées sur la figure 46. On distingue la quantité de VUV émise au cours de la décharge et la quantité de VUV émise post-décharge. On note une augmentation significative de l'émission de post-décharge avec la valeur de la pression, alors que la quantité émise durant la décharge évolue peu. La majeure partie de l'augmentation du rayonnement VUV atomique avec la pression provient ainsi de l'émission post-décharge. La simulation du peuplement de $Xe(1s_4)$ post-décharge dans le modèle développé dans le chapitre précédent pour différentes valeurs de la pression du mélange avec 1 % de xénon montre une évolution très similaire entre la densité de $Xe(1s_4)$ produits post-décharge et la quantité de VUV post-décharge à 147 nm.

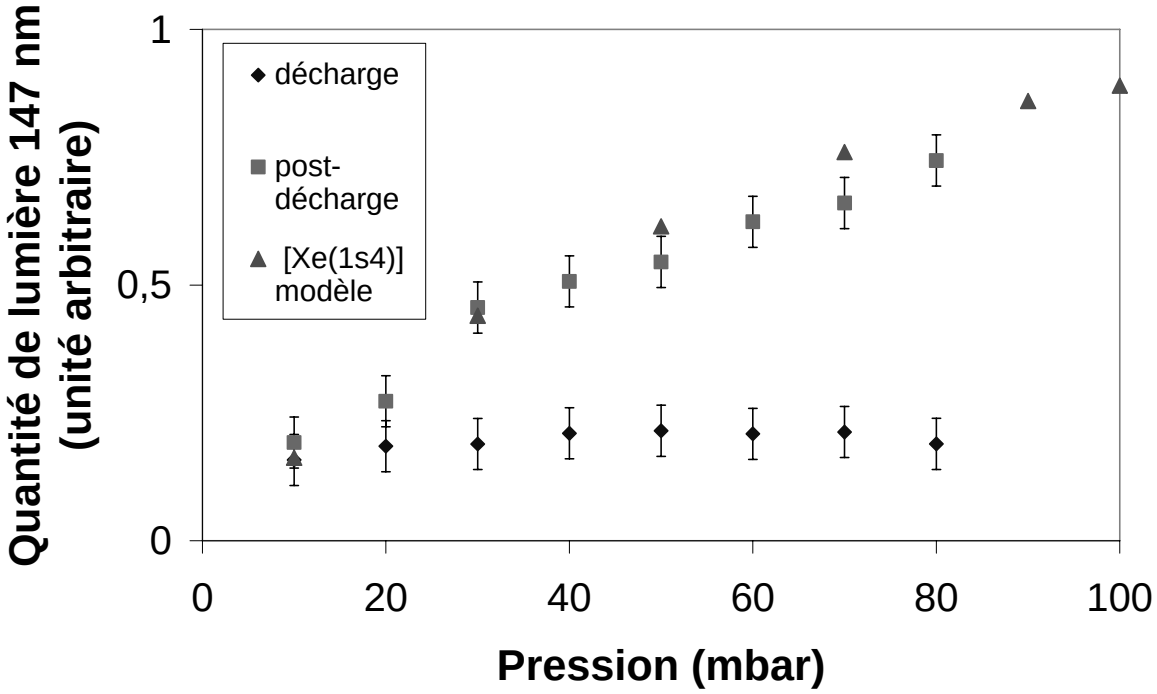


Figure 46: quantité de lumière VUV de décharge et de post-décharge en fonction de la pression totale pour un mélange 99% néon- 1% xénon. Mesure avec visée dans le plan du luminophore. Comparaison avec l'évolution de la population de Xe ($1s_4$) post-décharge fournie par le modèle. Durée d'impulsion : 2µs. Puissance prise : 65W. Tension appliquée : 1 kV.

b) Réponse du luminophore

- ***Observations***

Le flux moyen à 147 nm a été enregistré au moyen de la visée placée dans le plan du luminophore (figure 47). Ce flux est obtenu expérimentalement en intégrant le signal issu du PM avec une impédance suffisante (1MΩ) placée en entrée de l'oscilloscope. On présente aussi la mesure de l'éclairement fourni par le luminophore. Sur les deux enregistrements, on remarque un gain similaire et significatif lorsque la pression passe de 10 à 40 mbar. Au-delà, au contraire du flux VUV qui continu d'augmenter, l'émission du luminophore atteint un plafond.

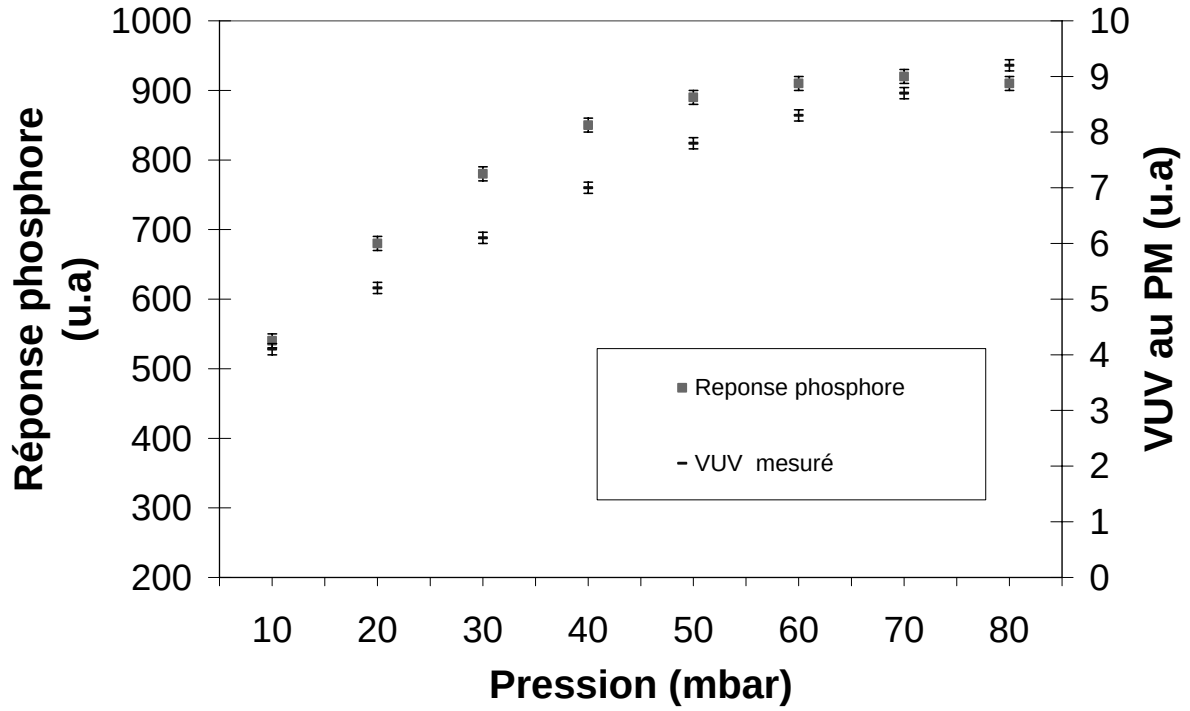


Figure 47: évolution du flux émis par le luminophore et du flux VUV enregistré au niveau du luminophore par la visée, en fonction de la pression de mélange. Durée d'impulsion : 2µs. Puissance prise : 65W. Tension appliquée : 1 kV.

- ***Mise en évidence de la contraction***

Malgré une proportion de xénon relativement basse, une contraction progressive de la décharge sur son axe apparaît à mesure que la pression de mélange augmente. Un montage incluant une camera CCD, présenté à la figure 48, a été mis en place afin de vérifier et quantifier cette contraction dans le domaine visible. On enregistre une image de la colonne positive de la décharge avec un temps d'exposition de 10 ms pour différentes valeurs de pression d'un mélange 99% néon-1% xénon dans une enseigne de diamètre 13/14 mm. L'intensité lumineuse radiale en fonction de la pression est visible sur la figure 49. On définit une demie-largeur *R* que l'on mesure arbitrairement à 10% de la valeur maximum des courbes d'intensité lumineuse. La figure 50 montre l'évolution, en fonction de la pression, de *R*. On note une diminution significative de sa valeur à partir de 40mbar de pression de mélange.

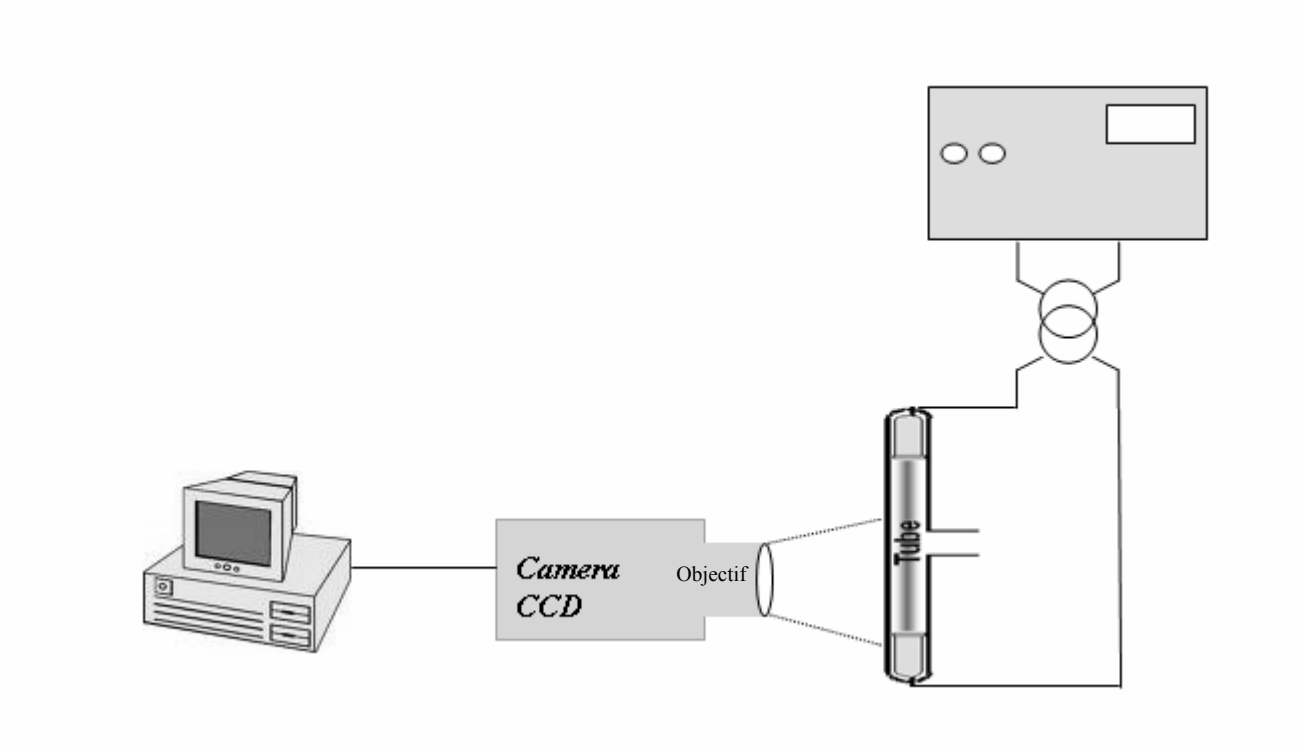


Figure 48: montage CCD permettant la mesure de la contraction de la décharge luminescente de néon-xénon.

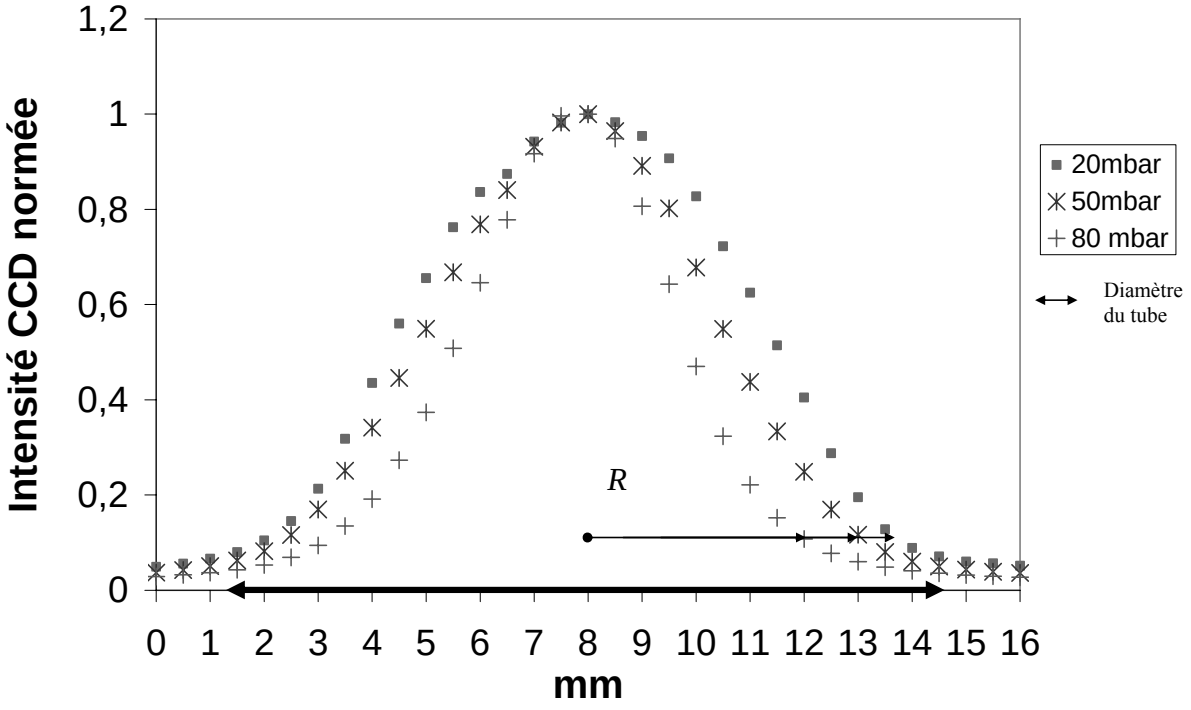


Figure 49: illustration de l'évolution du profil radial de l'intensité lumineuse émise par la colonne positive de la décharge 99% neon – 1% xenon pour 3 pressions de mélange. Tension appliquée : 1 kV. Puissance appliquée à l'enseigne constante : 20 W.

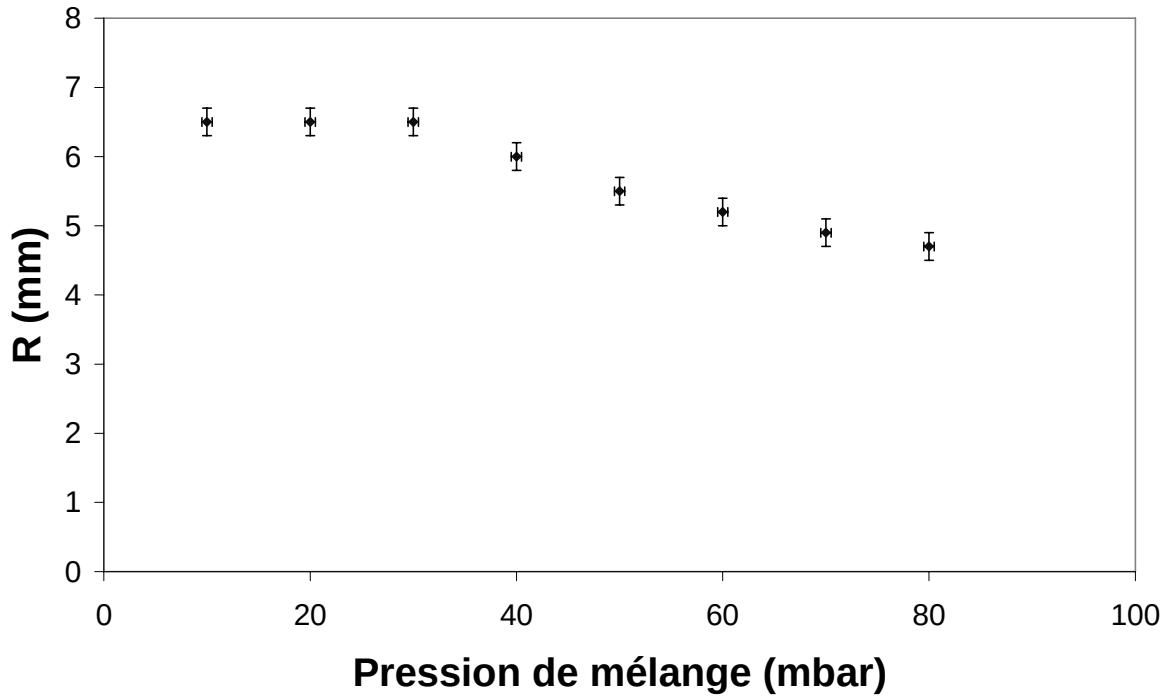


Figure 50: évolution de R en fonction de la pression de mélange. Puissance appliquée à l'enseigne constante : 20 W.

La contraction d'une décharge diffuse est un phénomène connu dans les décharges plasma travaillant au-delà d'une dizaine de Torr, et a été fortement étudiée au cours des dernières décennies. L'apparition de cette contraction dépend da la pression P du mélange, mais également du courant et du rayon r du tube à décharge [Petr_1999]. Si le courant est suffisant, la contraction peut avoir lieu lorsque la valeur critique du produit P.r est dépassée. Les travaux de Baranov et de Ul'yanov [Bar_1969] montre que la valeur critique du produit P.r dans l'argon vaut 20 Torr.cm. Si l'on considère (figure 50) que l'on observe expérimentalement la contraction en néon-xénon dans un tube de 13 mm de diamètre interne à partir de 40 mbar (soit 30 Torr), on obtient une valeur de P.r critique équivalente d'environ 20 Torr.cm (30*0.65 cm= 19.5 Torr.cm) (ou 26 mbar.cm).

Les premières théories développées relient la contraction de la décharge à l'existence d'un gradient de température radial du gaz. Pour Kenty [Ken_1962] par exemple, les fortes températures régnant au cœur de la colonne positive limite la formation des ions moléculaires. A l'inverse, la diminution radiale de la température favorise leur apparition en bord de plasma, où leur recombinaison dissociative entraîne une perte de charges plus importante qu'au centre, générant ainsi la contraction. Les théories les plus récentes, dites de « diffusion-recombinaison », et élaborées essentiellement par Golubovskii et ses collaborateurs (citons par exemple [Gol_1979]), considèrent que les facteurs prépondérants dans la contraction de la décharge sont la diffusion ambipolaire et le taux d'ionisation. En bord de plasma, où la densité d'électrons froids est plus forte qu'au centre, le taux de recombinaison est supérieur au taux d'ionisation, ce qui confine la décharge. Dans tous les cas, des travaux sont encore en cours pour mieux comprendre la physique de la contraction [Dya_2008].

- ***Conséquence de la contraction***

  - *Sur la mesure du flux VUV*

On considère la colonne positive comme étant constituée d'un plasma optiquement épais. Le rayonnement à 147 nm émis dans le volume de plasma subit une série d'absorption-réémission. Ainsi, seule l'émission finalement produite en surface de la colonne positive pourra atteindre le luminophore ainsi que le hublot de la visée spectroscopique. On rappelle que la visée est un petit élément optique conçu au laboratoire afin de récupérer, dans le plan du luminophore, le rayonnement émis par le plasma. Elle permet d'éviter l'emprisonnement résonant de la raie à 147 nm entre le plasma et l'entrée du spectromètre (chapitre II). Il faut tenir compte des caractéristiques géométriques de cette visée pour interpréter correctement les enregistrements VUV.

Soit R le rayon de la colonne positive, on admet que la visée observe une surface circulaire de rayon a= 2 mm (Figure 51). Le flux VUV total Ft produit par la surface d'un cylindre de plasma de rayon R et de hauteur 2a s'exprime à partir du flux mesuré Fm par le rapport entre la surface totale du cylindre de plasma de hauteur 2a et la surface observée par la visée:

$$\text{Ft} = \frac{2.\pi.R.2a}{\pi.a^2}.Fm \quad \text{d'où} \quad \text{Ft} = \frac{4.R}{a}.Fm$$

Ainsi, le flux mesuré doit être corrigé de $\frac{4.R}{a}$ pour donner une image du flux reçu par le luminophore. Ce calcul reste valable tant que la surface observée par la visée est « contenue » dans la surface cylindrique de la colonne positive, ce qui expérimentalement est le cas malgré la diminution du rayon de la colonne positive avec la pression.

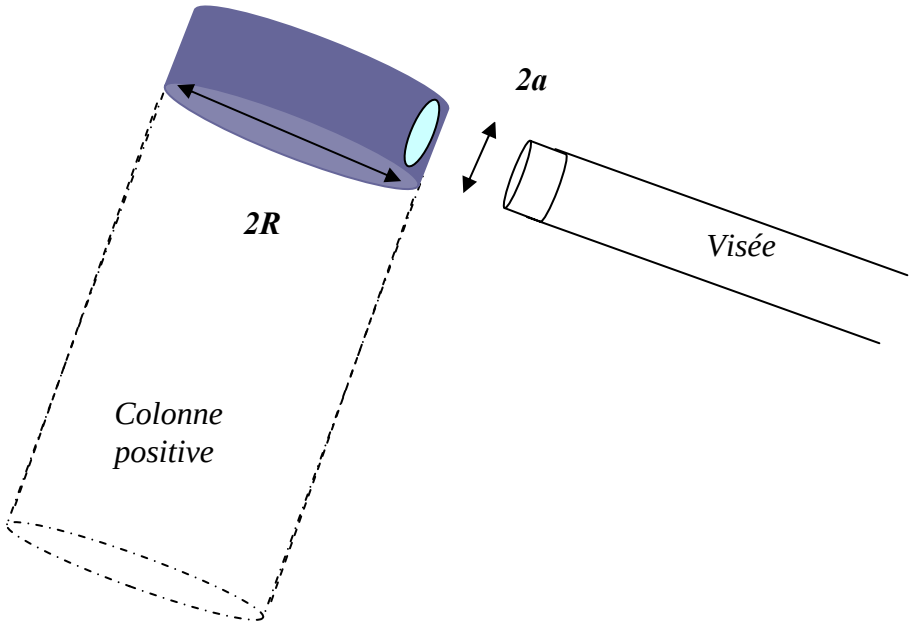


Figure 51: schéma illustrant la surface observée par la visée sur un cylindre (correspondant à une section de colonne positive) de diamètre 2R et de hauteur 2a.

- *Sur l'excitation du luminophore*

La figure 52 compare l'évolution de la réponse du luminophore avec celle du flux VUV mesuré corrigé. On remarque que la diminution du diamètre de la colonne positive au-delà de 40 mbar génère un plafond dans la valeur du flux VUV reçu par le luminophore, et permet de retrouver une évolution comparable avec celle du luminophore. On notera tout de même que le flux VUV corrigé à tendance à diminuer plus rapidement que la réponse du luminophore au-delà de 40 mbar. La diffusion des métastables du xénon vers les parois pourrait faire que le rayon R_{vuv} soit légèrement plus grand que le rayon R (présenté figure 50), mesuré dans le visible. Le facteur de correction à appliquer en réalité ($\frac{4.R_{vuv}}{a}$) serait alors légèrement plus grand que le facteur de correction utilisé ($\frac{4.R}{a}$).

Ainsi, il apparaît que, lorsque la pression augmente, la production de VUV est favorisée. Cependant, l'augmentation de cette production VUV entre en compétition avec la contraction de la décharge, qui réduit le volume de plasma. Cette réduction du volume limite l'excitation du luminophore malgré l'augmentation du flux produit localement.

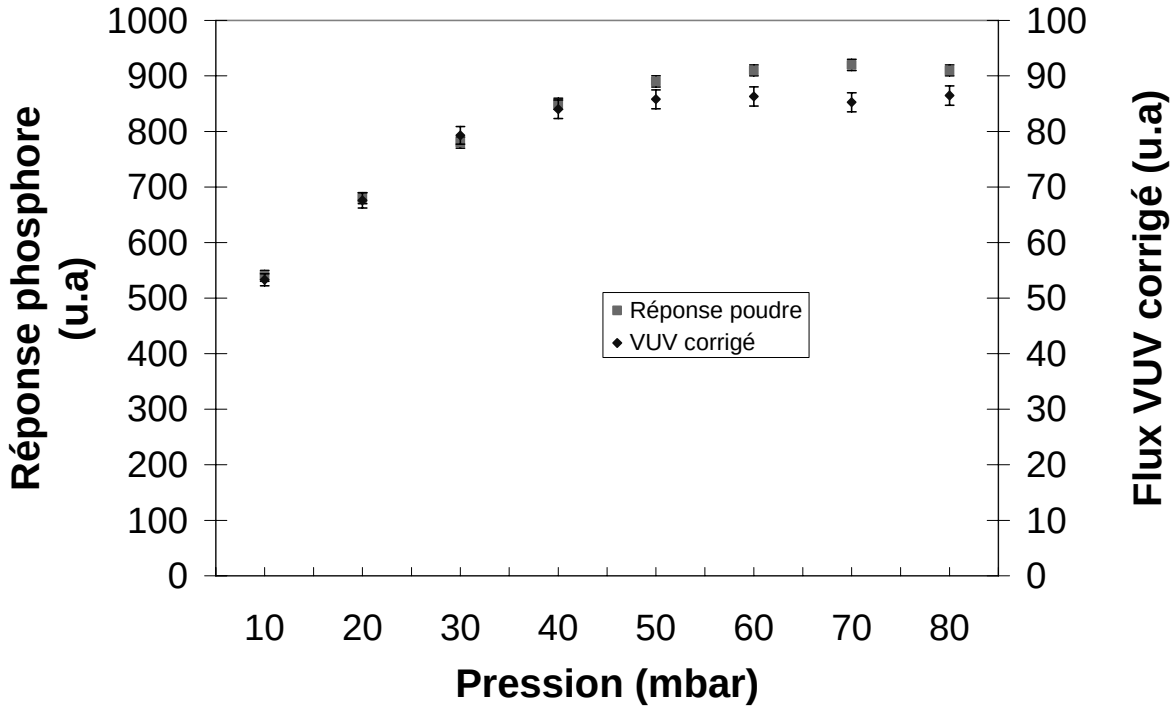


Figure 52: évolution du flux VUV corrigé de la contraction de la colonne positive comparé à la réponse du luminophore. Durée d'impulsion : 2µs. Tension appliquée : 1kV.

- ***Influence du diamètre du tube sur la contraction***

Le produit P.r est un paramètre important pour l'apparition ou non du phénomène de contraction. On a montré que dans le cas d'une décharge 99% néon-1% xénon, la valeur critique de ce produit est de 20 Torr.cm (soit 26 mbar.cm), ce qui, pour un tube de diamètre interne 13 mm, correspond à une contraction à partir de 40 mbar environ de pression de mélange. Afin de pouvoir travailler au-delà de 40 mbar sans atteindre la valeur critique de P.r, une solution peut résider dans la diminution du diamètre du tube. Nous avons mené des expériences dans un tube de 9 mm de diamètre interne, soit 4,5 mm de rayon. Avec un tel rayon, la contraction est supposée ne pas avoir lieu en dessous de 60 mbar de pression de mélange environ. Au-delà, la valeur limite de P.r est dépassée, la contraction peut théoriquement se produire. Les résultats de l'éclairement fourni par de tels tubes sont visibles sur la figure 53. On vérifie expérimentalement que l'éclairement fourni par le tube 9mm continu d'augmenter quand l'éclairement fourni par le tube 13 mm atteint son plafond. Cette observation tendrait à montrer l'intérêt de travailler avec des diamètres de tube réduits pour limiter la contraction et optimiser ainsi l'excitation du luminophore. Cependant, peu de marché existe pour des tubes de diamètre aussi faible, ce qui contraint d'utiliser des tubes de diamètre supérieur.

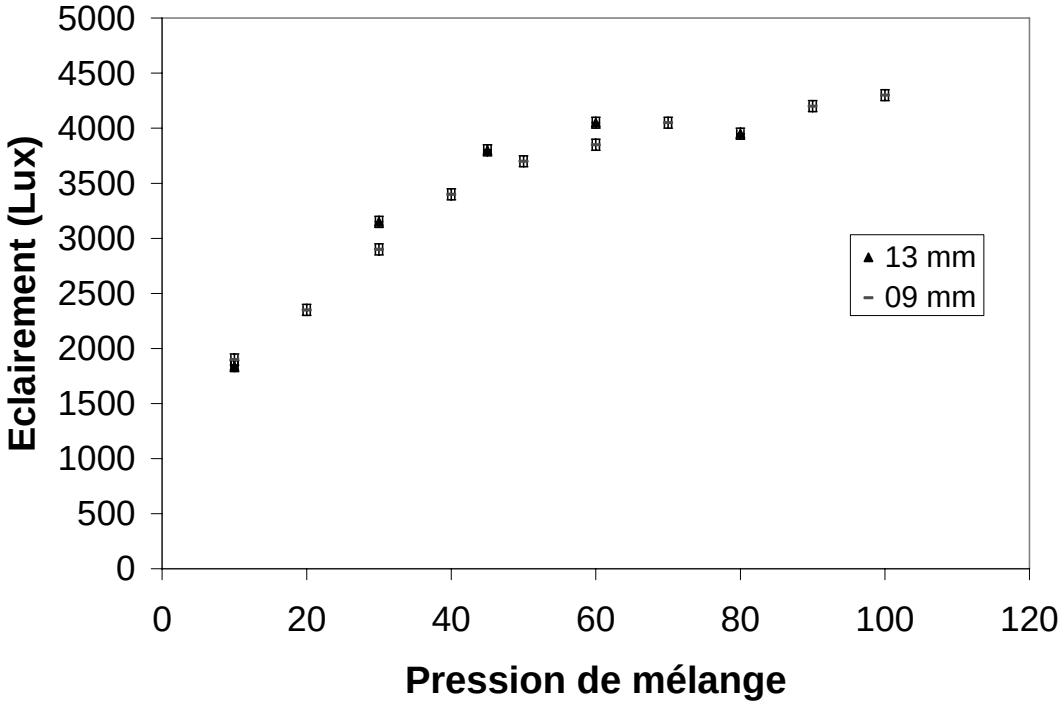


Figure 53: Eclairement en fonction de la pression dans un tube de 9 mm de diamètre interne et dans un tube de 13 mm de diamètre interne. Décharge 99% néon-1 % xénon en flux. Puissance prise : 45W. Tension appliquée : 1 kV.

c) Efficacité énergétique

- ***Efficacité lumineuse en fonction de la puissance électrique***

On cherche maintenant à caractériser l'efficacité des décharges 99% néon-1% xénon selon la pression de mélange lorsque l'on augmente la puissance électrique appliquée à leurs bornes. Les mesures ont été faites sur des tubes scellés à différentes pressions de mélange. La figure 54 illustre les résultats pour 3 pressions représentatives. Le tube à relativement basse pression (30 mbar) a un rendement élevé à basse puissance, car facile à amorcer. Ce rendement diminue cependant fortement avec l'augmentation de la puissance électrique. Pour les tubes à pression plus élevée (60 mbar et 80 mbar), le rendement est très faible à basse puissance, ce qui traduit sans doute des difficultés d'amorçage. Par contre, lorsque la puissance augmente, le rendement augmente fortement avant d'atteindre un plafond et de décroitre de façon monotone. Dans tous les cas, la valeur maximum du rendement atteint dépend de la pression de mélange, mais reste compris entre 10 et 20 lm/W pour les 3 tubes présentés. Globalement, on voit que les rendements les plus intéressants se situent du côté des basses puissances. Ainsi, il apparaît que l'utilisation, pour une même puissance électrique totale, de plusieurs lampes peut être un moyen d'augmenter le flux résultant par rapport à une lampe seule. Le tableau 7 réunit des données obtenues sur la courbe 60 mbar de la figure 54. On voit que l'application de 20 W électriques aux bornes d'une enseigne seule génère un flux de 200 lm. La même puissance électrique répartie sur 4 enseignes permet d'atteindre une valeur de flux total supérieure de l'ordre de 320 lm.

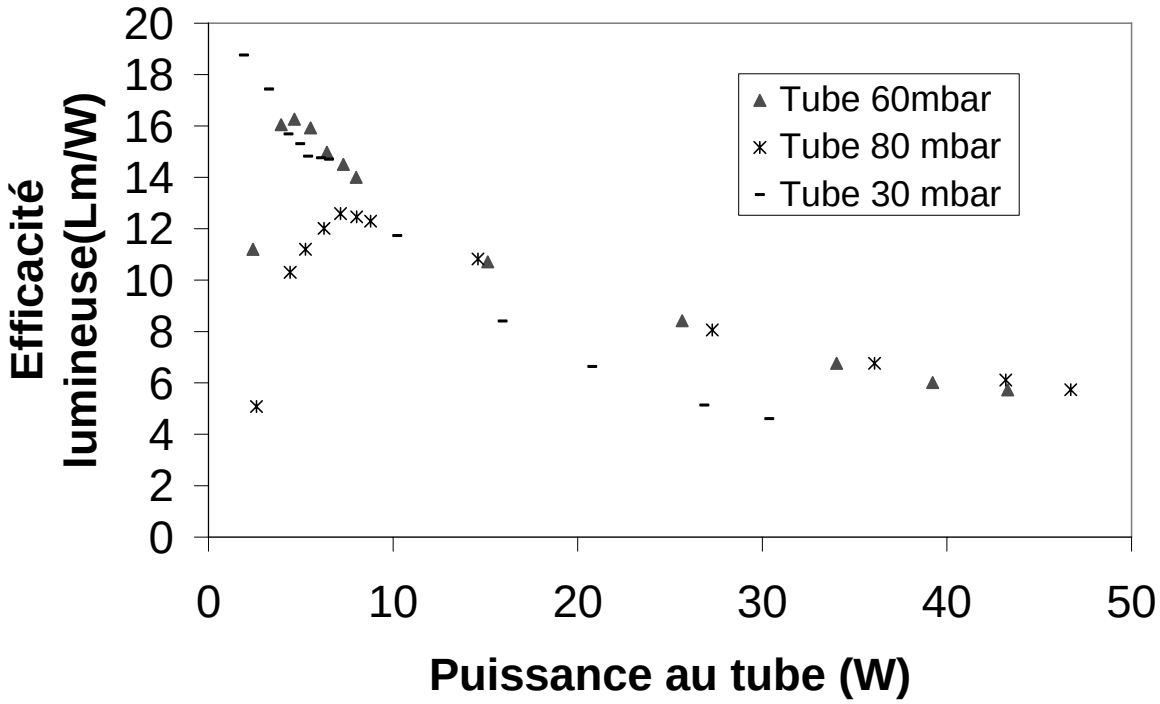


Figure 54: efficacité lumineuse en fonction de la puissance appliquée aux bornes pour 3 tubes de pressions différentes.

Tableau 7 : tableau comparatif des performances d'une lampe seule et d'un ensemble de lampes pour une puissance totale consommée identique. Tube 60 mbar.

Nombre de lampes	*Puissance par lampe (W)*	*Puissance totale (W)*	*Efficacité par lampe (lm/W)*	*Flux totale (lm)*
1	*20*	*20*	*10*	*200*
4	*5*	*20*	*16*	*320*

- ***Répartition de l'énergie***

Afin de mieux comprendre l'évolution de l'efficacité lumineuse, on a mesuré, en utilisant la sphère intégratrice, la répartition de la puissance optique émise en fonction de la puissance électrique reçue pour un tube à 60 mbar. L'objectif est d'observer comment se répartit la puissance rayonnée. La figure 55 présente l'interface logiciel de la sphère intégratrice. Le logiciel permet, à l'aide de curseurs, de sélectionner une zone du spectre et de connaître la puissance optique correspondante. On notera que l'étendue spectrale observable par la sphère débute à 300nm et ne dépasse par 1050 nm : même si de nombreuses raies du néon existent entre 1µm et 2.5 µm de longueur d'onde, on peut supposer que le quenching de *Ne** par *Xe* réduit fortement ce rayonnement. Par contre, le xénon présente lui aussi de nombreuses raies entre 1µm et 2.6 µm, dont certaines peuvent à priori être relativement intenses (par exemple 1084 nm, 1108 nm, 1262 nm). Ainsi, on doit garder à l'esprit que les mesures de la sphère ne fournissent qu'une représentation partielle de la puissance rayonnée par l'enseigne.

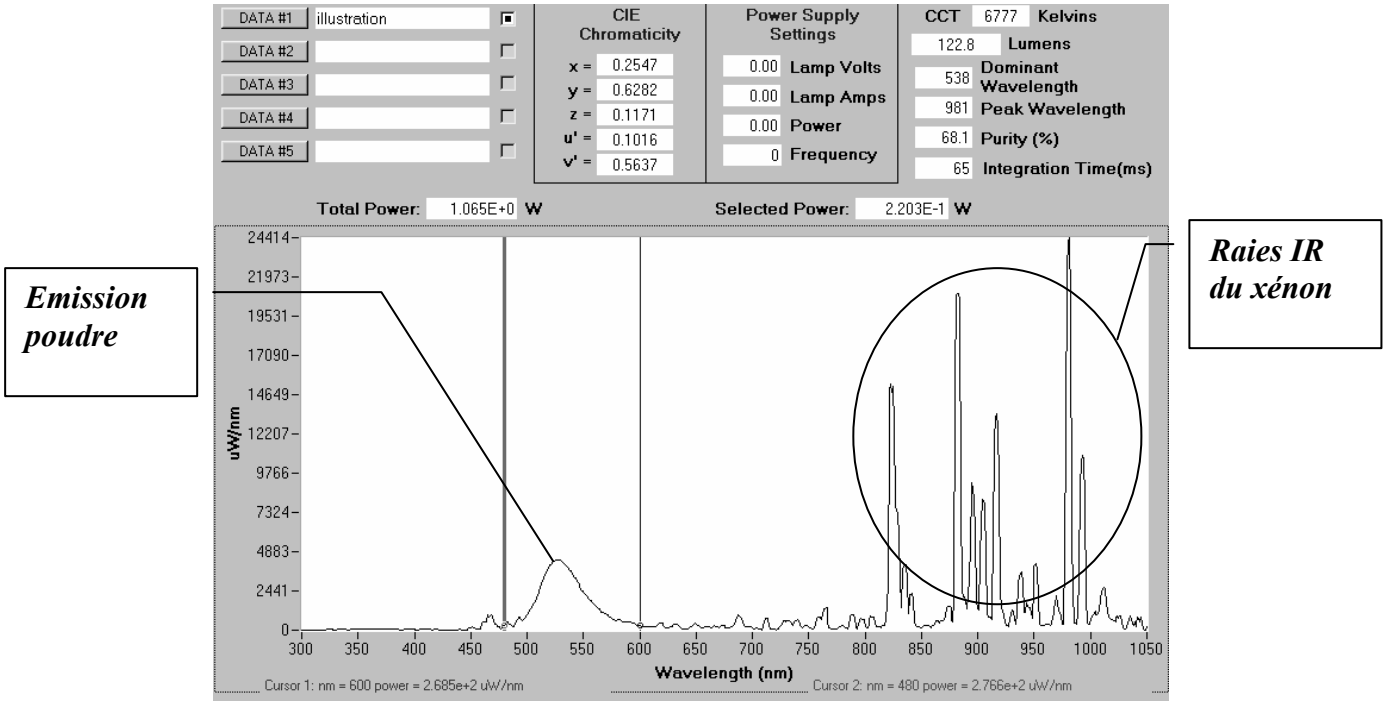


Figure 55: interface logiciel de la sphère intégratrice. Le spectre affiché est celui d'un tube scellé (99% néon 1% xénon) à 60 mbar. Puissance appliquée aux bornes: 12W. On remarque les curseurs qui permettent de sélectionner une zone du spectre (ici l'émission du luminophore) et de connaître la puissance optique correspondante.

A basse puissance électrique (quelques W), on a observé que la puissance optique se répartit à 30% environ dans le spectre d'émission du luminophore (480→600nm) et à 65 % environ dans les émissions IR discrètes du xénon (700→1050 nm) ; les 5 % restant se répartissent sur le reste du spectre mesurable. Pour des puissances électriques supérieures à 10 W (figure 56), les proportions sont encore plus défavorables : en effet, la puissance optique est rayonnée à 75% environ dans le domaine IR, et à seulement 20 % dans l'émission du luminophore. Outre un rapport visible/IR défavorable, le graphique de la figure 56 nous renseigne également sur le rendement de conversion électrique/optique : on note que la plus grande partie de la puissance électrique fournie n'est pas récupérée en puissance optique. Ainsi, l'application de 12 W électriques permet de récupérer une puissance optique de l'ordre de 1 W seulement. Bien que la puissance optique augmente proportionnellement à la puissance électrique, la pente d'accroissement reste relativement faible. Ainsi, pour 30 W appliqués aux bornes de l'enseigne, la puissance optique atteint à peine 2 W.

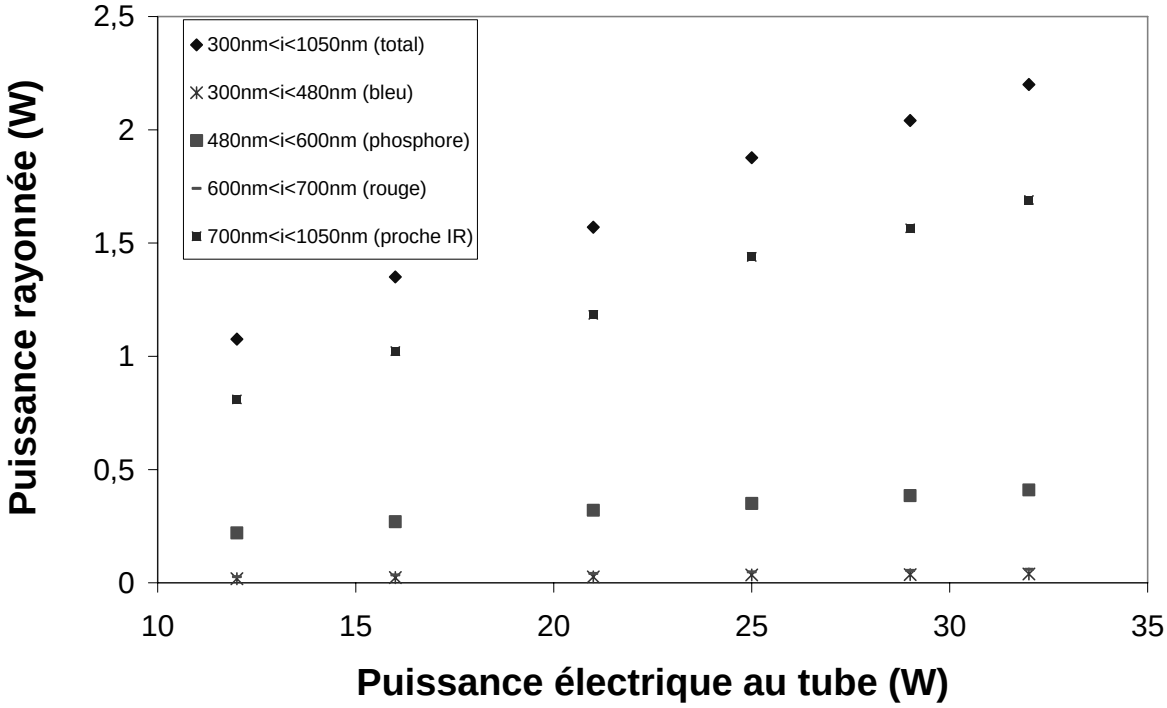


Figure 56: mesure dans la sphère intégratrice de la puissance optique enregistrée totale et en fonction de la plage de longueur d'onde selon la puissance électrique appliquée. Durée d'impulsion : 2µs. Tension appliquée : 1kV. L'augmentation de la puissance électrique est obtenue par élévation de la valeur de fréquence.

La différence existante entre la puissance électrique fournie et la puissance optique enregistrée peut à priori avoir plusieurs causes. D'après [Lis_2004], la puissance électrique totale d'une décharge dans un gaz est dissipée via l'émission lumineuse, la chaleur, l'accélération des ions dans les gaines et la diffusion :

$$W_{elec} = W_{rad} + W_{chaleur} + W_{gaine} + W_{diff}$$

Ayant constaté un échauffement du verre au cours du fonctionnement des enseignes, nous avons réalisé des mesures de température, par thermocouple, sur le verre au niveau

d'une l'électrode et à 20 cm de cette électrode (figure 57). On remarque que l'élévation de la température augmente linéairement avec la puissance appliquée à l'enseigne, ce qui confirme qu'une partie tout au moins de l'énergie apportée par l'élévation de puissance est transformée en chaleur. Les mesures montrent que la température est plus élevée au niveau de l'électrode qu'au centre du tube. L'échauffement plus important du verre au niveau des électrodes résulte probablement d'une dissipation de chaleur par l'électrode suivie d'un transfert radiatif vers la paroi de l'ampoule. Les électrodes ont une résistance électrique (mesurée au laboratoire) de l'ordre de 50 mOhm, ce qui rend la dissipation d'énergie par effet joule négligeable. La dissipation d'énergie par échauffement provient donc entièrement du bombardement des électrodes par les ions de néon et de xénon. L'échauffement du verre à 20 cm de l'électrode résulte quant à lui sans doute de la conduction de la chaleur depuis les parties proches des électrodes, mais également de l'effet Stokes ; en effet, la puissance VUV nécessaire à l'excitation du luminophore est supérieure à la puissance lumineuse émise par le luminophore : la différence d'énergie entre photons VUV et photons visibles est convertie en chaleur. On a cherché à estimer l'énergie nécessaire pour porter le verre de l'ampoule de 25°C (température ambiante) à 60°C (température au niveau de l'électrode sous 10 W). La chaleur massique du pyrex valant environ 0.8J/(g.K), si l'on néglige le refroidissement par l'air ambiant, une élévation de 25° C à 60° C de 100g de pyrex (~masse du tube) nécessite une énergie de 3000 J environ. Avec une puissance électrique de 10W, cette énergie peut être déposée sur le verre en 300 s, ce qui est compatible avec les temps d'expérimentation. Ainsi, il est possible d'envisager que la différence entre l'énergie électrique fournie et l'énergie lumineuse enregistrée soit perdue, pour une partie probablement importante, dans les échauffements des électrodes et de l'ampoule.

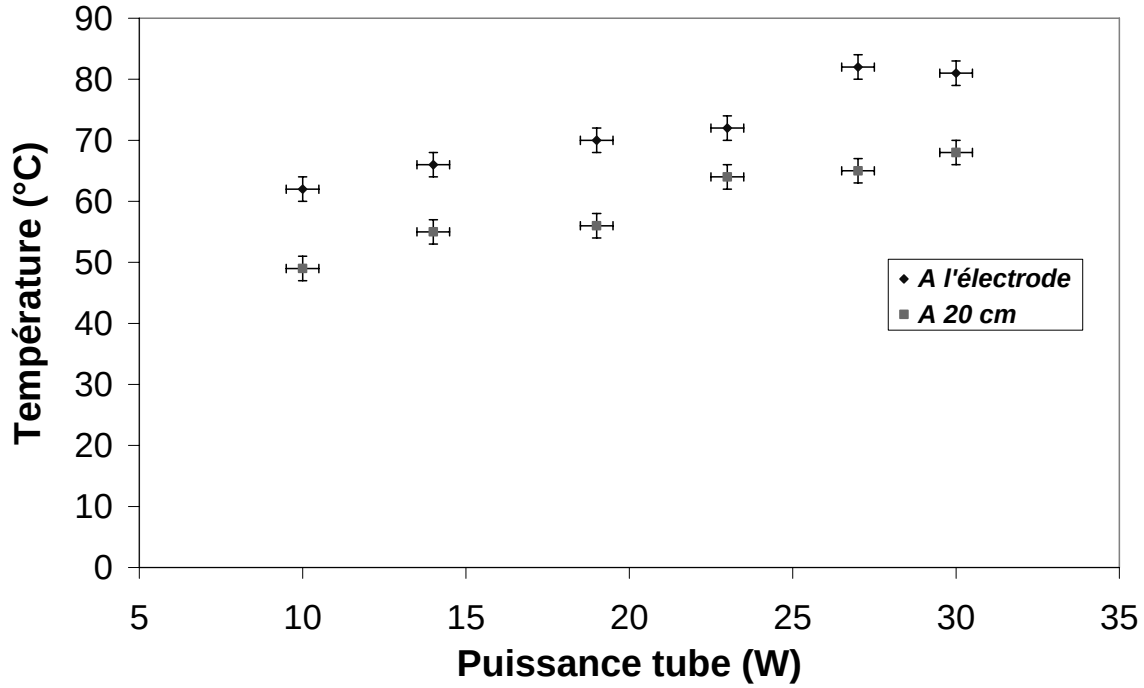


Figure 57: mesures de températures au thermocouple en fonction de la puissance injectée à l'enseigne, au niveau de l'électrode et à 20 cm de l'électrode. Durée d'impulsion : 2µs. Tension appliquée : 1 kV. L'augmentation de puissance électrique est obtenue par élévation de la valeur de fréquence.

Enfin, une partie de la différence entre la puissance électrique appliquée et la puissance optique enregistrée pourrait, à priori, être également transportée par le rayonnement IR au-delà de 1 µm de longueur d'onde, rayonnement que la sphère n'enregistre pas. Le pyrex ayant une transmission très proche de 90 % entre 0.3 et 2.5 µm (figure 58), ce rayonnement IR ne participe par contre pas significativement à l'échauffement du tube.

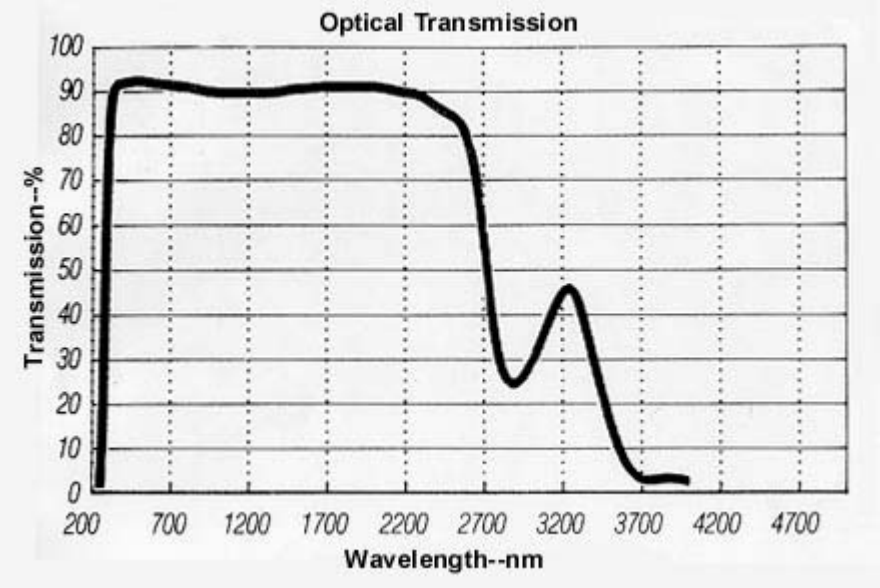


Figure 58: courbe de transmission du pyrex (source protégée: valley design corporation)

4. Conclusion partielle

On a pu montrer qu'il est préférable de travailler avec une faible pression partielle de xénon, afin de conserver une décharge relativement diffuse sur une large gamme de pression (entre 0 et 100 mbar). Il est apparu que les décharges Penning de néon-xénon fonctionnant à pressions intermédiaires (quelques dizaines de mbar) produisent un rayonnement VUV, en particulier post-décharge, plus intense qu'à basse pression. En effet, l'augmentation de la densité de néon favorise la production d'ions moléculaires et donc la production de VUV post-décharge qui découle de leur recombinaison dissociative. Cependant, l'augmentation de la pression entraîne parallèlement une contraction de la décharge qui diminue le volume d'émission du plasma et limite l'excitation du luminophore. Pour une décharge composé à 99% de néon et 1% de xénon, on estime que la valeur critique du produit pression x rayon du tube (P.r), au-delà de laquelle la décharge se contracte, est de 20 Torr.cm environ, ce qui correspond à une pression de 40 mbar dans une ampoule de 13 mm de diamètre interne. Un moyen possible de travailler au-delà de 40 mbar sans dépasser le produit P.r est de diminuer la valeur de r. Les expériences ont montré que l'émission du luminophore issue d'un tube de 9 mm de diamètre interne suit une progression quasi-linéaire entre 0 et 70 mbar de pression de mélange. Ainsi, la réduction du diamètre des tubes pourrait constituer un moyen pour bénéficier de l'augmentation de la production de rayonnement VUV. Cependant, d'après l'équipe technique d'Aupem Sefli, des tubes de ce diamètre intéressent peu les acteurs du marché de l'enseigne.

Il est apparu que l'efficacité énergétique des décharges dépend à la fois de la pression du mélange et de la puissance électrique appliquée au tube. Quelle que soit la pression de mélange, le maximum d'efficacité est atteint pour des puissances électriques relativement

faibles : en effet, l'analyse de la répartition spectrale du rayonnement émis montre que l'augmentation de la puissance électrique entraîne l'apparition d'un fort rayonnement dans l'infrarouge ainsi qu'un échauffement important du verre de l'ampoule et des électrodes, ce qui nuit fortement à l'efficacité des décharges. Ceci tendrait à montrer l'intérêt d'associer plusieurs lampes à basse puissance.

B. Etude de l'excitation électrique

On se propose maintenant de caractériser le comportement des décharges 99% néon-1% xénon en fonction de deux paramètres importants de l'excitation impulsionnelle : la fréquence d'excitation et la durée d'impulsion.

1. Influence de la valeur de fréquence

a) Effet mémoire

Comme on l'a décrit au début du chapitre III, l'impulsion de courant passe par deux phases distinctes. La première phase correspond à l'apparition d'un courant de quelques centaines de mA. La deuxième phase correspond à une augmentation relativement brutale du courant. Les expériences ont montré que la valeur de la fréquence est un paramètre important qui influence significativement la durée des phases I et II. La figure 59 illustre cette affirmation. On y remarque que la phase I est d'autant plus courte que la fréquence des impulsions est élevée. L'amplitude crête atteinte par le courant augmente également avec la valeur de la fréquence. On peut interpréter ces observations en considérant que l'utilisation d'un signal d'excitation pulsée à une fréquence de quelques kHz génère un « effet mémoire » [Aga_1995]: l'impulsion de tension arrive dans un milieu qui n'est pas isolant, mais dans lequel subsiste une densité résiduelle d'électrons produits par les impulsions précédentes et qui dépend donc de la fréquence du signal. L'augmentation de cette fréquence, en élevant la densité d'électrons résiduelle, favorise la production d'ions positifs et la mise en place d'une émission secondaire efficace, et donc l'apparition rapide d'un courant de décharge important. Sur les trois courbes 2.2 kHz, 1.4 kHz et 1.3 kHz présentées, si l'on estime la fin de la phase I respectivement à 1.5, 2.5 et 3 µs, alors la quantité de charge de la phase I s'élève dans les 3 cas à 10^{-6} C environ. Ainsi, il semblerait qu'il existe un seuil de quantité de charge, ici égal à 10^{-6} C environ, à partir duquel l'émission secondaire, et donc la décharge, se met en place efficacement.

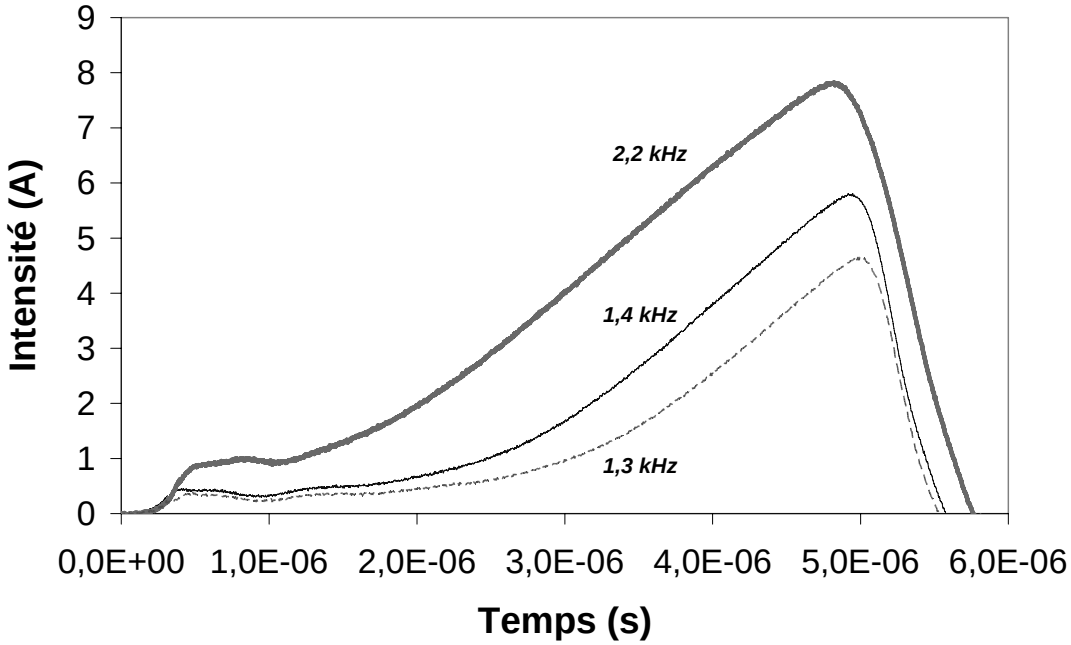


Figure 59: allure de l'impulsion de courant selon la fréquence d'excitation. Durée d'impulsion : 5µs. Tube 99% neon-1% xénon à 45 mbar. Tension appliquée : 1kV

b) Conséquence sur l'allumage

La valeur de la fréquence, en influençant la densité électronique du milieu, a une action significative sur le processus d'allumage, et notamment sur la tension. La valeur de la tension minimum à appliquer aux bornes de l'enseigne pour y obtenir une décharge luminescente a été mesurée en fonction de la pression. La figure 60 présente les valeurs obtenues en fonction de la pression pour deux fréquences différentes. On constate que l'augmentation de la fréquence des impulsions permet d'abaisser significativement, au-delà d'une dizaine de mbar, le seuil de tension nécessaire à l'allumage de la décharge. Ceci découle directement de l'effet mémoire. A basse fréquence, les électrons disposent du temps nécessaire pour se recombiner en quasi-totalité avant l'arrivée de l'impulsion suivante. L'impulsion arrive donc dans un milieu quasiment isolant. A plus haute fréquence, une densité résiduelle d'électrons plus forte demeure dans le milieu : l'impulsion arrive dans un gaz plus fortement ionisé, la croissance de l'avalanche électronique, puis l'apparition de l'émission secondaire, est favorisée et nécessite des tensions de claquage moins élevées. Une conséquence expérimentale directe de cela est la possibilité d'allumer une décharge, à tension fixe, en élevant simplement la fréquence d'excitation, ce qui a pour effet de faire chuter la tension nécessaire à l'amorçage de la décharge.

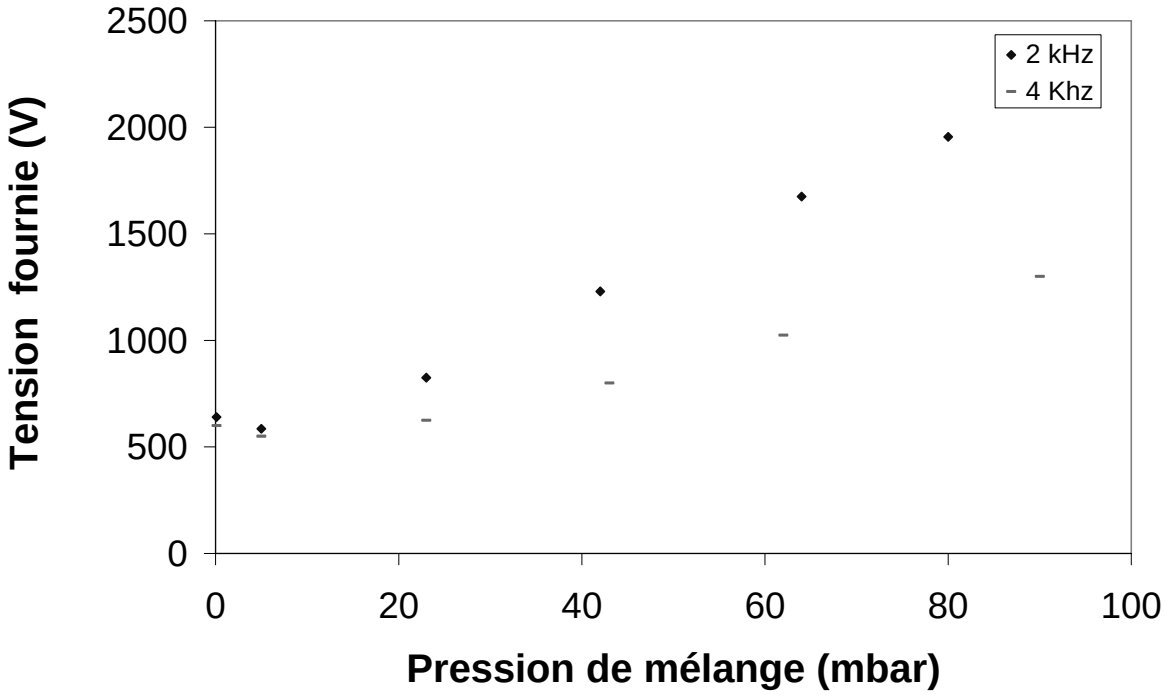


Figure 60 : valeur de la tension minimum aux bornes du tube en fonction de la pression de mélange. La tension retenue est celle affichée par l'alimentation continue, multipliée par le coefficient de transformation nominal du transformateur de sortie.

Afin de compléter ces mesures électriques, des enregistrements CCD dans le visible ont été réalisés en sortie d'électrode (à 2mm de la céramique, figure 61) pour différentes valeurs de fréquences. Sous 1kV et une durée d'impulsion courte (qques µs), l'utilisation d'une fréquence très basse (quelques centaines de Hertz) donne généralement naissance à une impulsion de courant très faible ; le plasma s'établit transitoirement en sortie d'électrode en suivant les oscillations amorties de la tension (figure 62 a) et b), courbes à 400 Hz) ; la colonne positive reste très peu lumineuse. Ceci semble traduire une difficulté de mise en place de l'émission secondaire lorsque la fréquence, et donc la densité électronique résiduelle pulse à pulse, est trop faible. Lorsque la fréquence augmente suffisamment, on observe que le plasma, en sortie d'électrode, atteint, plus ou moins rapidement selon la valeur de fréquence, un régime stable (figure 62 a) et b), courbes à 1.5 et 2.2 kHz). Les impulsions de courants atteignent des valeurs crêtes de plusieurs ampères et la colonne positive est alors bien lumineuse. Ceci tend à confirmer l'hypothèse d'une forte influence de la densité électronique résiduelle sur l'émission secondaire et sur l'allumage de la décharge.

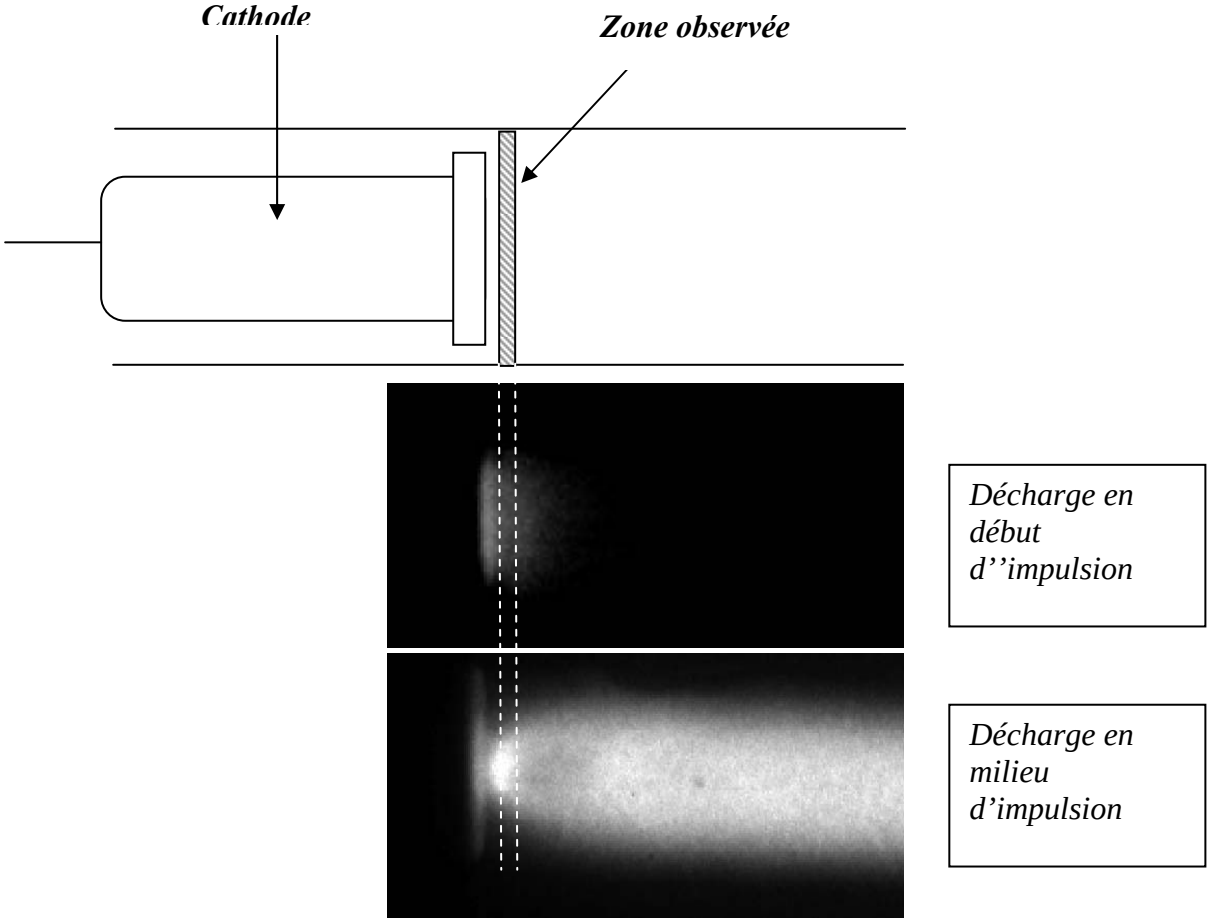


Figure 61: croquis et photographie correspondante de la zone observée en sortie d'électrode. Pulse : 5µs, 1.5 kHz.

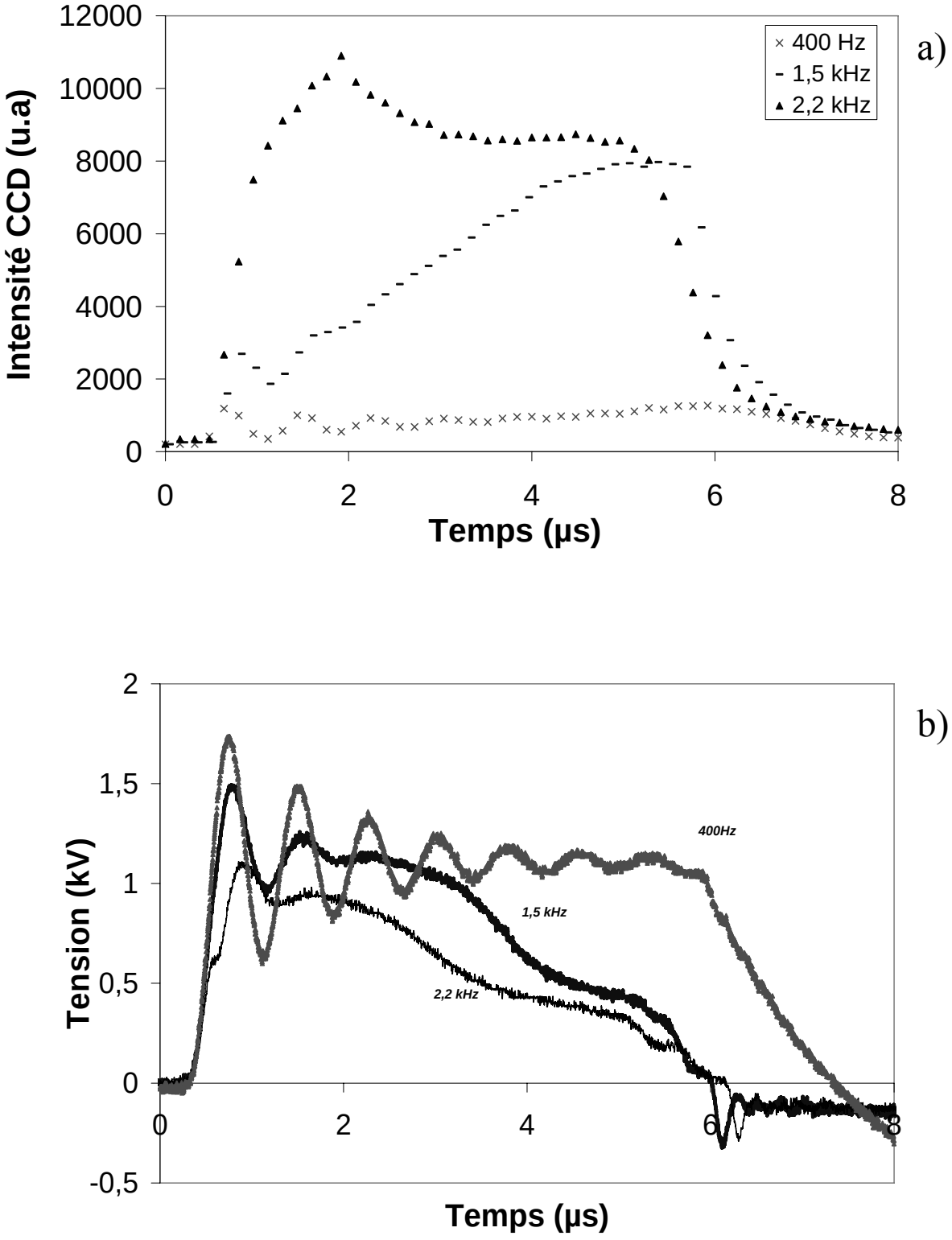


Figure 62: allure a) de la luminosité du plasma en sortie d'électrode et b) de l'impulsion de tension selon la fréquence.

2. Influence de la durée d'impulsion

a) Couplage durée d'impulsion-fréquence

On a cherché à mesurer l'influence de la durée d'impulsion sur les caractéristiques de la décharge. Il est apparu très vite que la puissance à la prise augmente fortement lorsque la durée d'impulsion s'élève, générant des valeurs de consommation électriques incompatibles avec des applications commerciales et même supérieures aux tolérances de GECOPULSE. Ainsi, en passant de 1 µs à 5µs de durée d'impulsion, la puissance à la prise passe de 20 à 120 W. Afin de conserver une puissance électrique raisonnable aux durées d'impulsion élevées, on a choisi de diminuer la valeur de la fréquence d'excitation. La figure 63 corrèle la fréquence des impulsions et leur durée pour conserver une puissance à la prise constante de 60W.

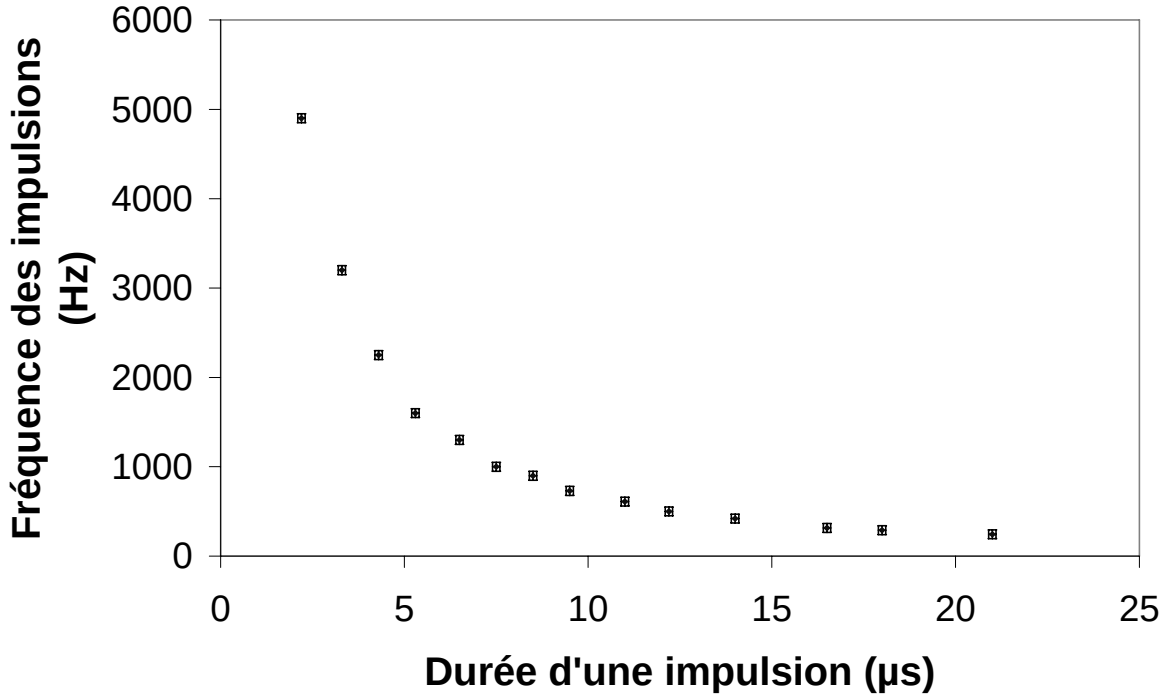


Figure 63: fréquence nécessaire à la conservation d'une puissance prise de 60W selon la durée d'impulsion. Décharge néon-xénon (1% de xénon) à 40mbar en flux.

La figure 64 présente l'allure des impulsions de courant correspondantes à 3 couples durée d'impulsion-fréquence présentés dans la figure 63. L'augmentation de la durée d'impulsion s'accompagne d'une augmentation de la valeur pic atteinte par l'impulsion de courant. On remarque l'allongement de la phase I de l'impulsion. La diminution de la fréquence d'excitation tend en effet, comme on l'a vu précédemment, à diminuer la densité électronique résiduelle moyenne dans le milieu, ce qui rallonge le délai d'apparition d'un bombardement ionique efficace des électrodes. Finalement, on obtient une élévation significative de la quantité de charges (figure 65), dont on peut supposer qu'elle reflète bien, en première approximation, l'évolution de la densité d'ions xénon atomiques.

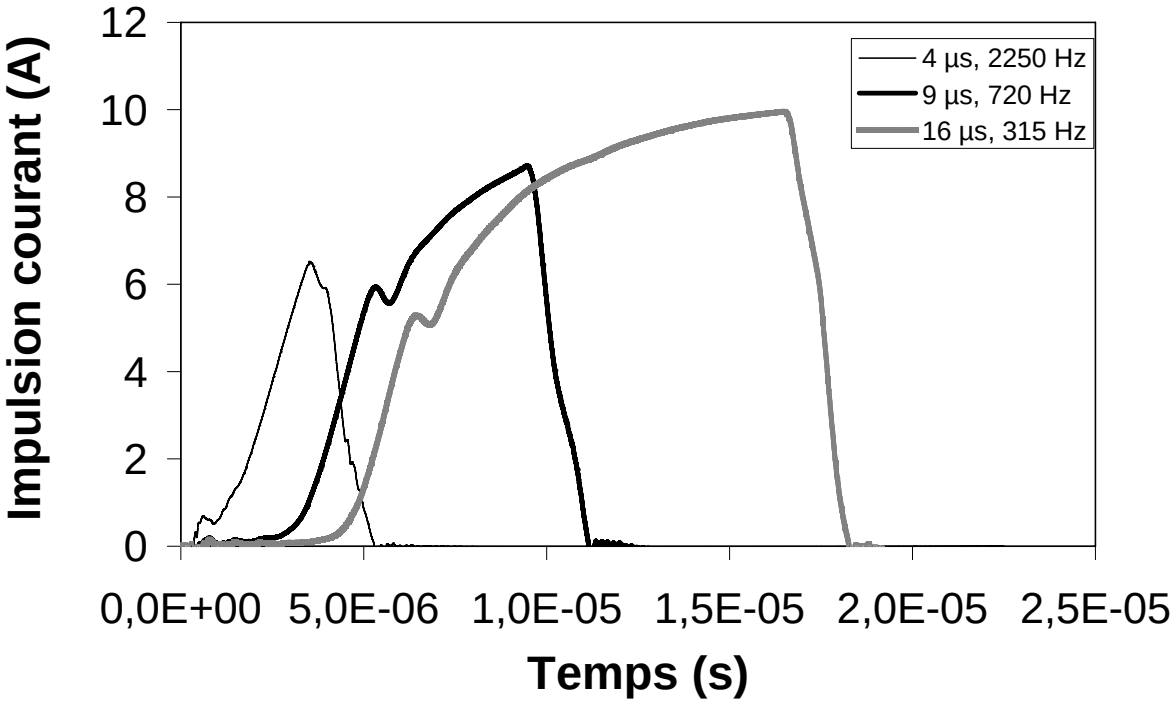


Figure 64: allure des impulsions de courant en fonction des valeurs prises par le couple durée d'impulsion-fréquence. Décharge néon-xénon (1% de xénon) à 40mbar en flux. Puissance prise : 60W.

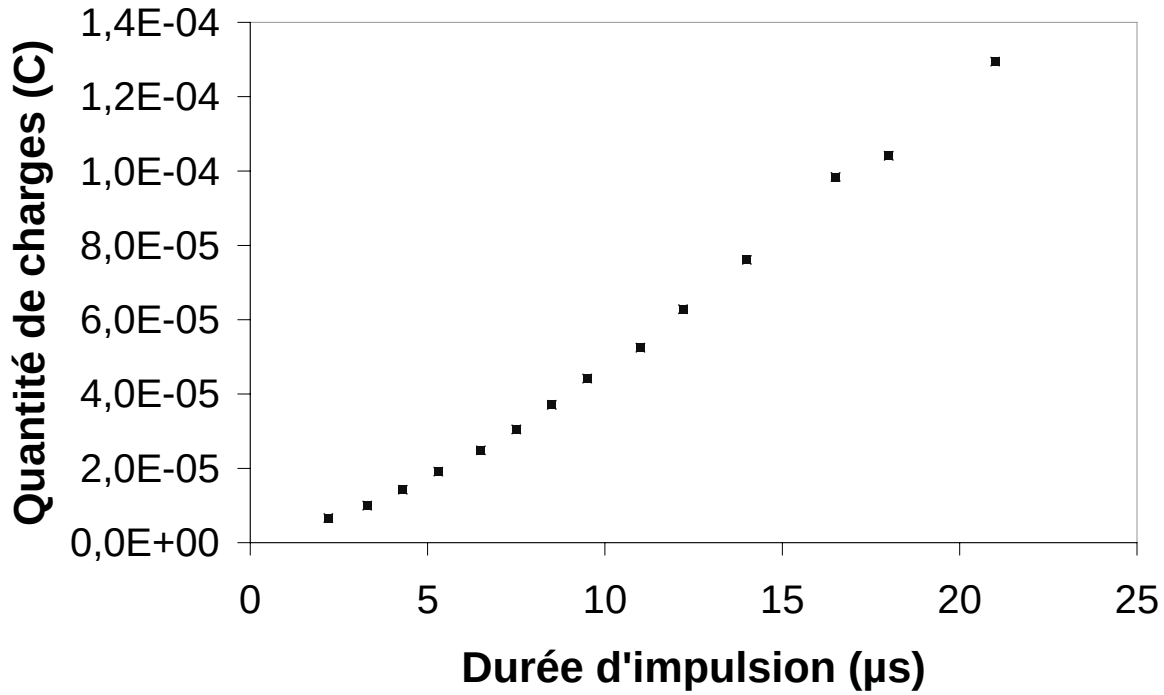


Figure 65: quantité de charges produite au cours d'une impulsion en fonction de la durée d'impulsion. Décharge néon-xénon (1% de xénon) à 40mbar en flux. La quantité de charge est obtenue en intégrant le courant sur la durée d'impulsion. Puissance prise : 60W.

b) Effet sur l'émission post-décharge

Le modèle simplifié a montré que la production de VUV post-décharge était liée au repeuplement des niveaux du xénon neutre suite à la recombinaison dissociative d'ions moléculaires. On rappelle ci-dessous les équations principales de production et de recombinaisons de ces ions moléculaires. Outre la densité de neutres, on note que la production d'ions moléculaires dépend de la densité d'ions de xénon atomique.

Production d'ions moléculaires :

$$Xe^+ + Xe + Ne \rightarrow Xe_2^+ + Ne \qquad R4$$

$$Xe^+ + 2Ne \rightarrow NeXe^+ + Ne \qquad R5$$

Recombinaisons dissociatives d'ions moléculaires :

$$Xe_2^+ + e \rightarrow (Xe_2^*)_{instable} \rightarrow Xe^* + Xe \qquad R9$$

$$NeXe^+ + e \rightarrow Xe^* + Ne \qquad R10$$

On a montré dans le a) précédent que l'augmentation de la durée d'impulsion permet d'augmenter la quantité de charges produites au cours de l'impulsion et donc, à priori, la densité de Xe^+. La quantité de charges augmente ainsi d'un facteur 2 environ entre 5 et 10 µs, et de plus d'un facteur 5 environ entre 5 et 20µs. Les courbes de la figure 66, obtenues via le modèle simplifié présenté au chapitre III, illustrent comment l'augmentation de la densité initiale de l'ion de xénon d'un facteur 2 ou 5 pourrait agir sur le peuplement post-décharge de Xe $(1s_4)$ pour une décharge contenant 49 mbar de néon et 1 mbar de xénon.

Des mesures spectroscopiques, au moyen du PM sensible au VUV monté sur le spectromètre principal, ont été réalisées afin d'observer l'évolution temporelle de la raie à 147 nm en fonction de la durée d'impulsion. L'étude a été menée sur une décharge Penning de néon-xénon à 40 mbar de pression de mélange. La proportion de xénon est de 1%, le diamètre interne du tube est 13 mm. Comme les résultats du modèle permettaient de le pressentir, l'augmentation de la densité d'ions, obtenue expérimentalement en élargissant la durée d'impulsion, permet d'améliorer très significativement l'intensité du flux VUV post-décharge (figure 67). On notera cependant qu'expérimentalement, à partir d'une certaine durée (environ 20 µs), l'émission post-décharge enregistrée n'augmente plus. Dans cette gamme de durée d'impulsion, la décharge prend un aspect filamentaire.

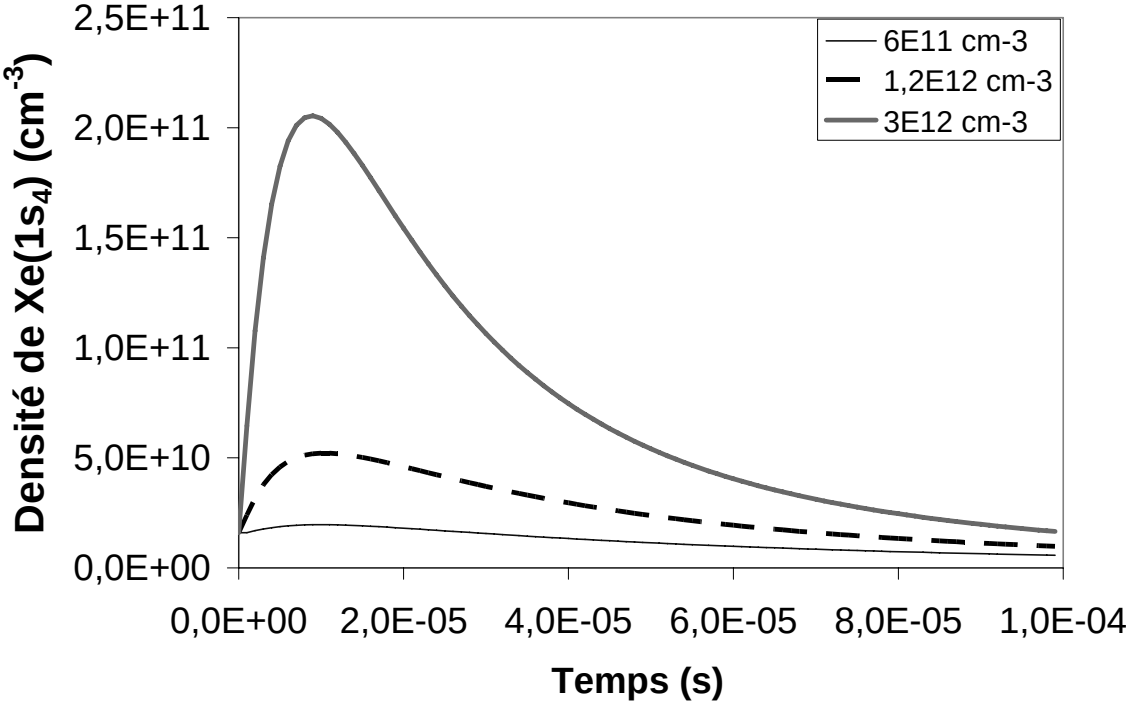


Figure 66: illustration de l'influence potentielle de la densité de l'ion de xénon pour le peuplement de Xe(1s4) post-décharge. Densité initiale de Xe(1s4) fixée à ~1E+10 cm^{-3} .

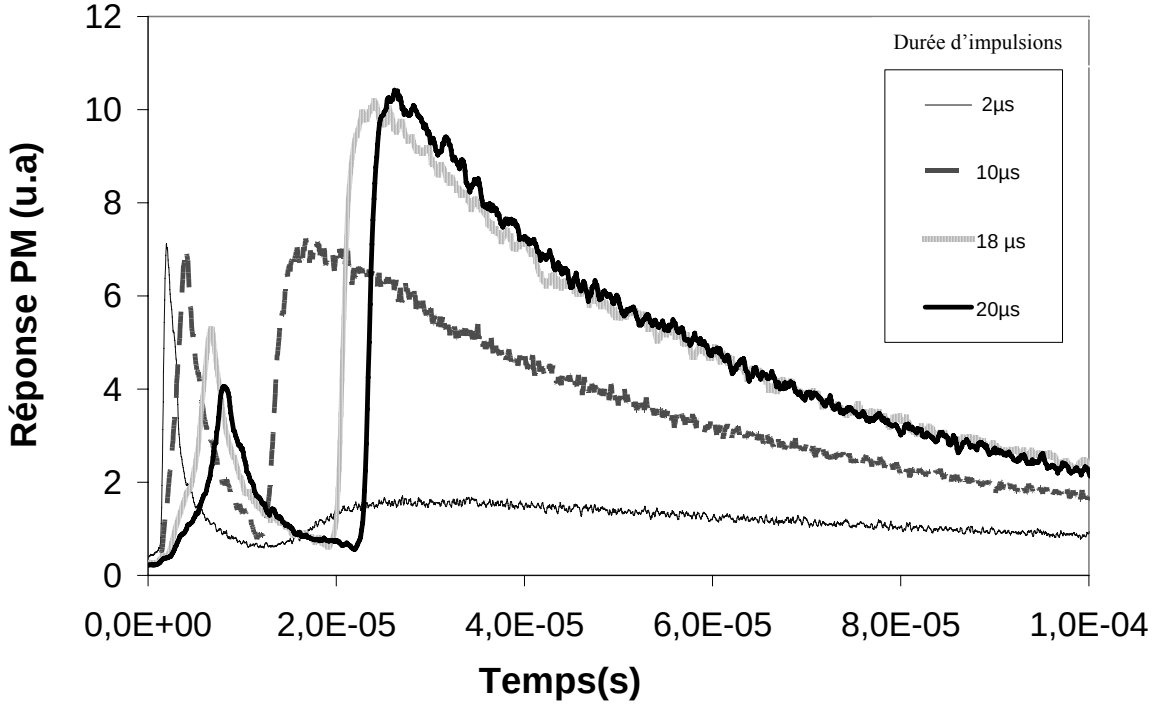


Figure 67: spectroscopie résolue en temps de la raie à 147 nm du xénon. Décharge néon-xénon (1% de xénon) à 40mbar en flux.

c) Décharge filamentaire

Comme on l'a vu dans la première partie de ce chapitre, on admet communément que la contraction de la décharge dépend de la pression P, du courant de décharge et du rayon r du tube à décharge. Dans le cas d'une décharge Penning 99% néon-1% xénon d'une durée de 2µs réalisée dans un tube de 13 mm de diamètre interne, on a mis en évidence que la contraction peut débuter à partir de 40 mbar environ. Lorsque la valeur critique du produit P.r n'est pas atteinte (par exemple pour P=10 mbar), l'augmentation de la durée d'impulsion (dans les limites de notre gamme) ne modifie pas significativement l'aspect de la décharge. Par contre, lorsque la valeur critique de P.r est dépassée, une augmentation de la durée d'impulsion (et la diminution de fréquence associée) va amplifier le phénomène de contraction jusqu'à la formation d'un filament brillant. La figure 68 illustre l'allure d'une décharge à 40 mbar pour une durée d'impulsion de 2µs (faiblement contractée) et une durée d'impulsion de 21µs (formation d'un filament brillant). Ainsi, malgré l'augmentation de la quantité de VUV produit au cours d'un cycle décharge/post-décharge, le flux VUV et l'éclairement fourni par le luminophore chutent très fortement. La figure 69 compare l'évolution de la quantité de lumière VUV sur un cycle décharge/post-décharge et l'évolution du flux VUV moyenné dans le temps. Les performances en termes d'éclairement, mesurées sur une enseigne scellées dans des conditions proches, apparaissent sur la figure 70.

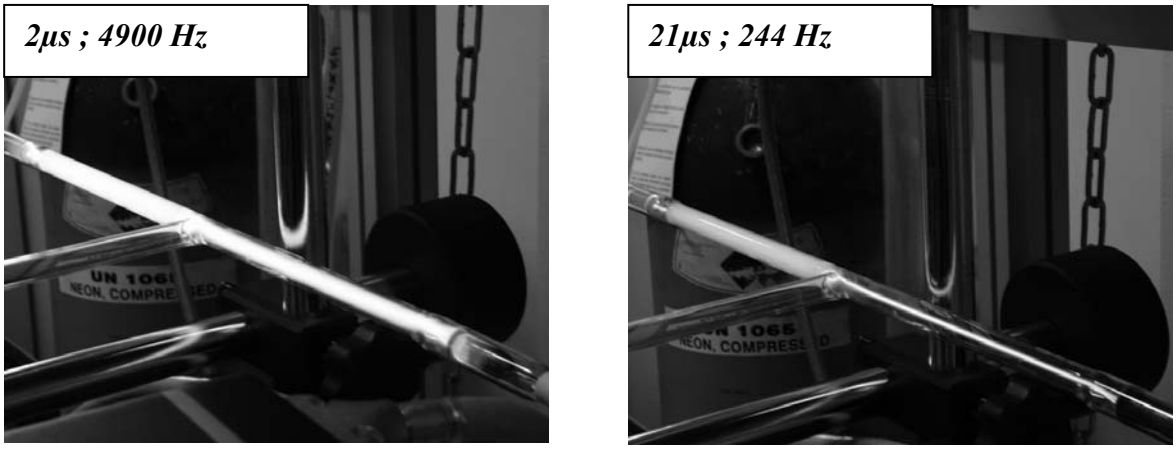


Figure 68: illustration de l'allure de la décharge pour le couples de valeurs (2µs; 4900 Hz) et (21 µs; 244Hz). Puissance prise : 60W. Décharge néon-xénon (1% de xénon) à 40mbar en flux.

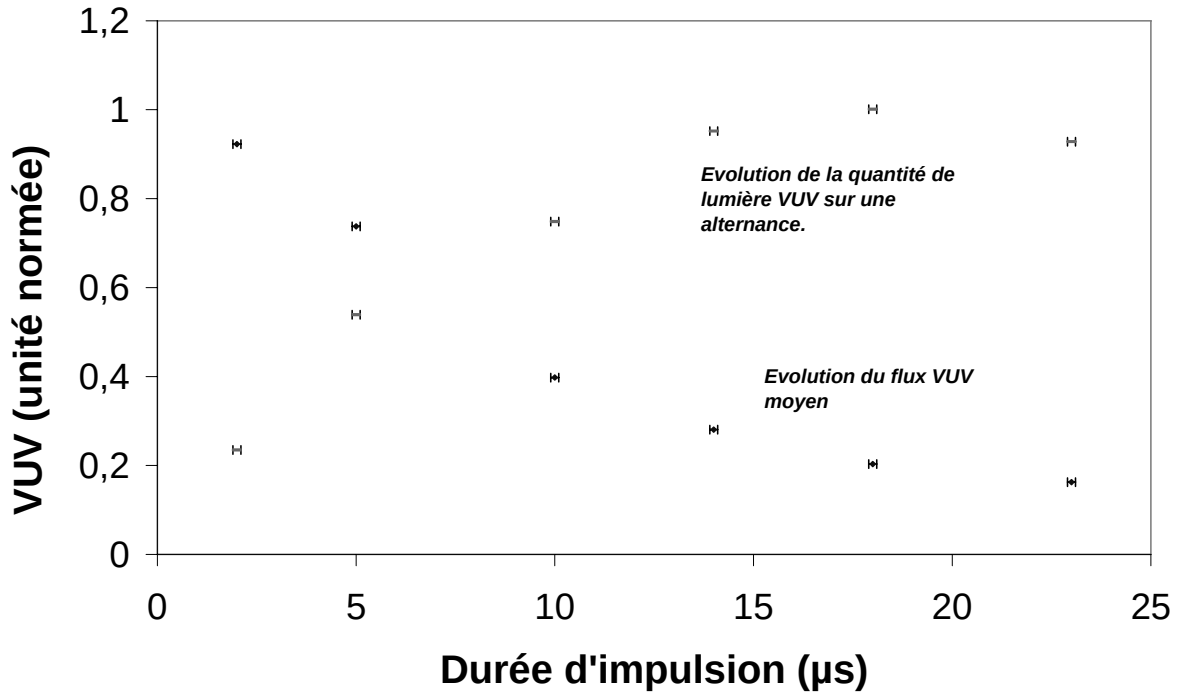


Figure 69: quantité de lumière VUV émise sur une alternance (décharge et post-décharge) et flux VUV moyen en fonction de la durée d'impulsion. Puissance prise : 60 W. Décharge néon-xénon (1% de xénon) à 40mbar en flux.

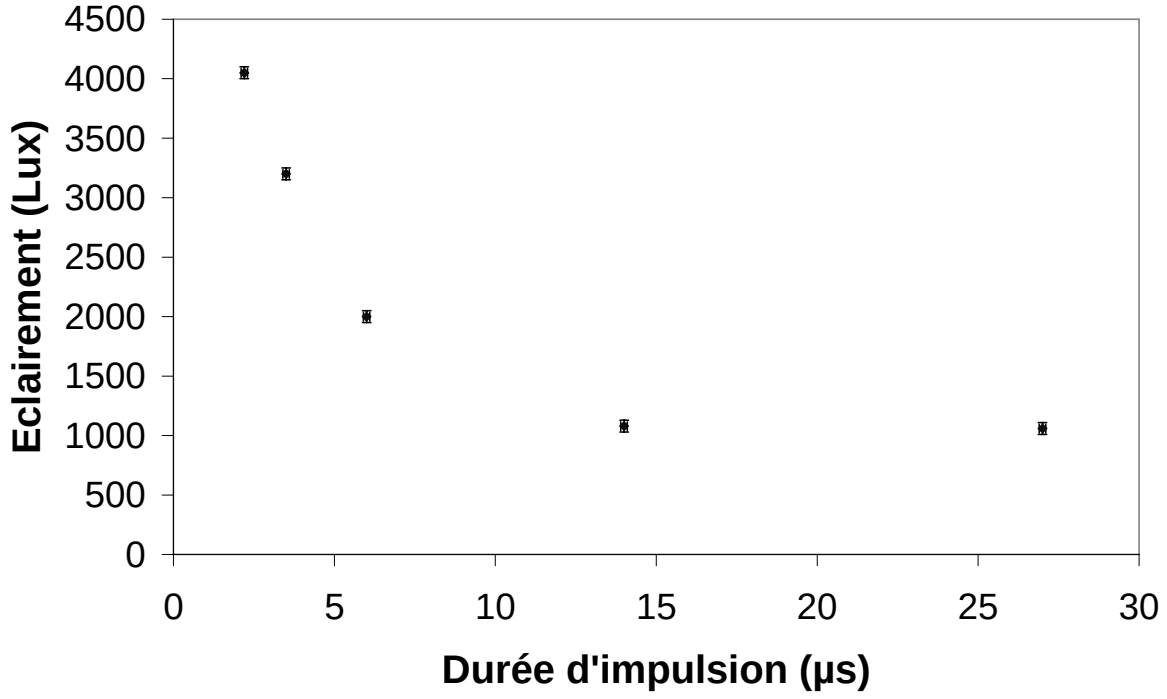


Figure 70: évolution typique de l'éclairement produit par une décharge néon-xénon en fonction de la durée d'impulsion, à puissance prise constante: 55W. Enseigne scellée néon-xénon (1% de xénon) à 45 mbar.

A l'inverse de cela, il est apparu que le maintien d'une fréquence à une valeur suffisante (~quelques kHz) permet d'éviter la formation d'un filament, malgré l'augmentation de la durée d'impulsion, mais entraîne, on l'a vu, des consommations électriques trop importantes. Le passage à l'état filamentaire semble donc plus fortement lié à la diminution de la fréquence qu'à l'élévation de la durée d'impulsion. Le noyau en ferrite du transformateur de sortie de GECOPULSE agit comme un filtre passe-haut, qui atténue les signaux basse fréquence. Ainsi, la puissance électrique perdue est plus importante lorsque le signal d'excitation est basse fréquence, ce qui pourrait être en partie à l'origine de la formation du filament (figure 71).

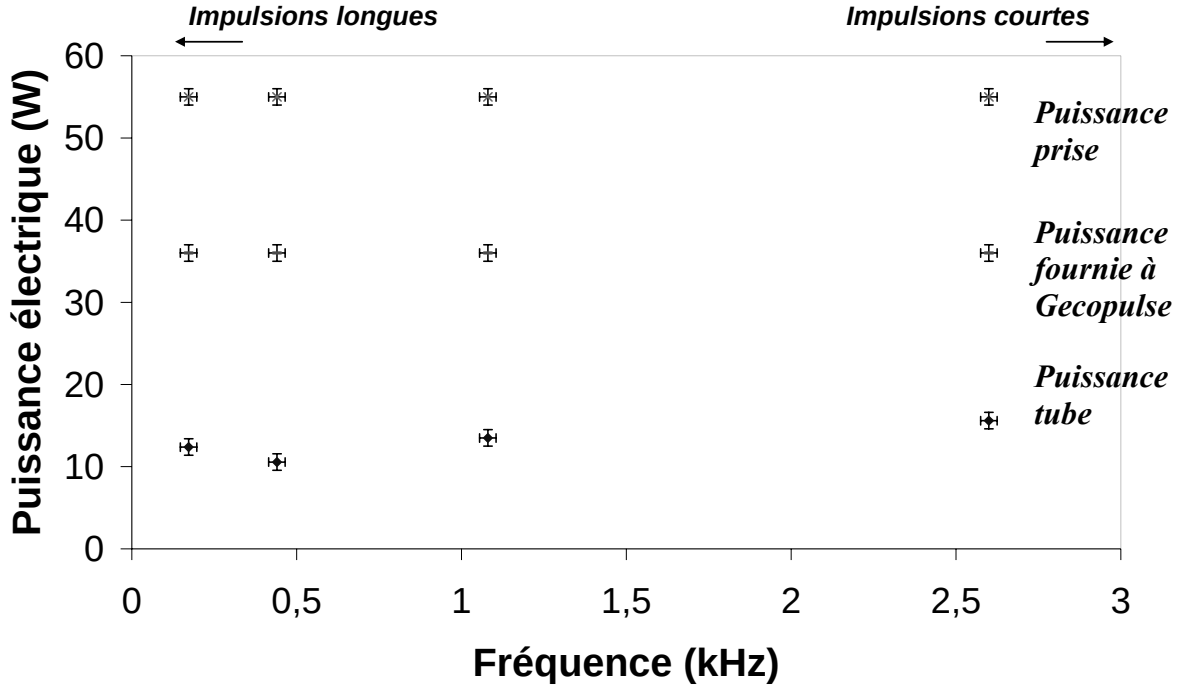


Figure 71: distribution de la puissance électrique à différents niveaux du dispositif expérimental selon la fréquence. Enseigne scellée néon-xénon (1% de xénon) à 45mbar.

Afin d'éliminer l'effet de filtrage basse fréquence, le transformateur de sortie a été supprimé. L'étude de la décharge dans ces nouvelles conditions fait l'objet de la section suivante.

3. Amélioration des performances de GECOPULSE

Le transformateur de sortie a été supprimé, et GECOPULSE a été modifié pour délivrer directement des impulsions kV. Ce nouveau prototype est noté GECOPULSE II. La modification consiste principalement dans le choix de transistors IGBT tolérant une différence de potentiel importante. Une conséquence de l'absence de transformateur est la modification de l'allure de tension (figure 72 a)), qui ne subit plus d'altération par effet capacitif ou inductif. Par contre, l'impulsion de courant ne subit pas de modification notable par rapport à l'allure obtenue avec transformateur (figure 72 b)). Le maintien de la tension à une valeur constante tout au long de l'impulsion semble avoir une légère influence sur

l'allure temporelle des raies émises par le xénon. La figure 73 illustre ceci avec la raie visible à 467.1 nm et la raie IR à 823.2 nm de longueur d'onde. Contrairement à ce que l'on a pu observer précédemment (Chapitre III), le rayonnement issue du xénon connaît une phase de croissance monotone jusqu'à l'extinction de l'impulsion. Comme on l'a vu au chapitre III, une légère modification dans la température électronique des électrons de la colonne positive suffit pour modifier fortement les valeurs de certaines sections efficaces de collisions électrons-atomes (figure 33, courbes [7] et [8]). On peut penser que la modification de l'alimentation électrique, en agissant même légèrement sur l'énergie des électrons, influence les processus de collisions et modifie l'allure du rayonnement en phase de décharge. Le rayonnement émis par le néon (588.2 nm ici) conserve quant à lui une allure similaire à celle présentée au chapitre III.

On notera enfin que la gamme de largeur d'impulsion exploitable par GECOPULSE II a été étendue vers les courtes durées jusqu'à 0.5 µs environ, afin de vérifier leur intérêt. La durée maximum d'impulsion de ce nouveau prototype est de 8 µs environ.

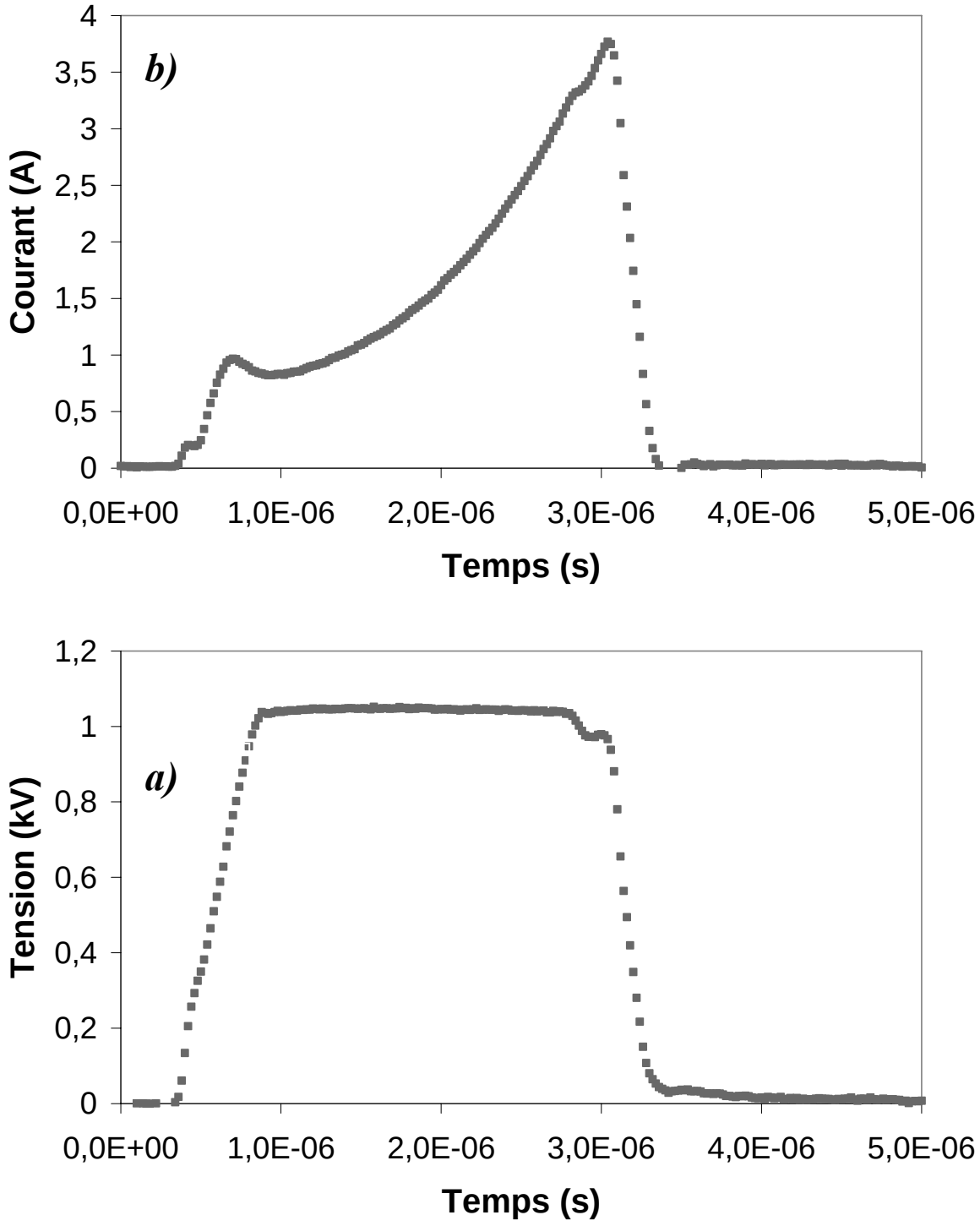


Figure 72: allure typique d'une impulsion a) de tension b) de courant fournis par Gecopulse sans transformateur de sortie. Tube scellé néon-xénon (1% de xénon) à 45mbar.

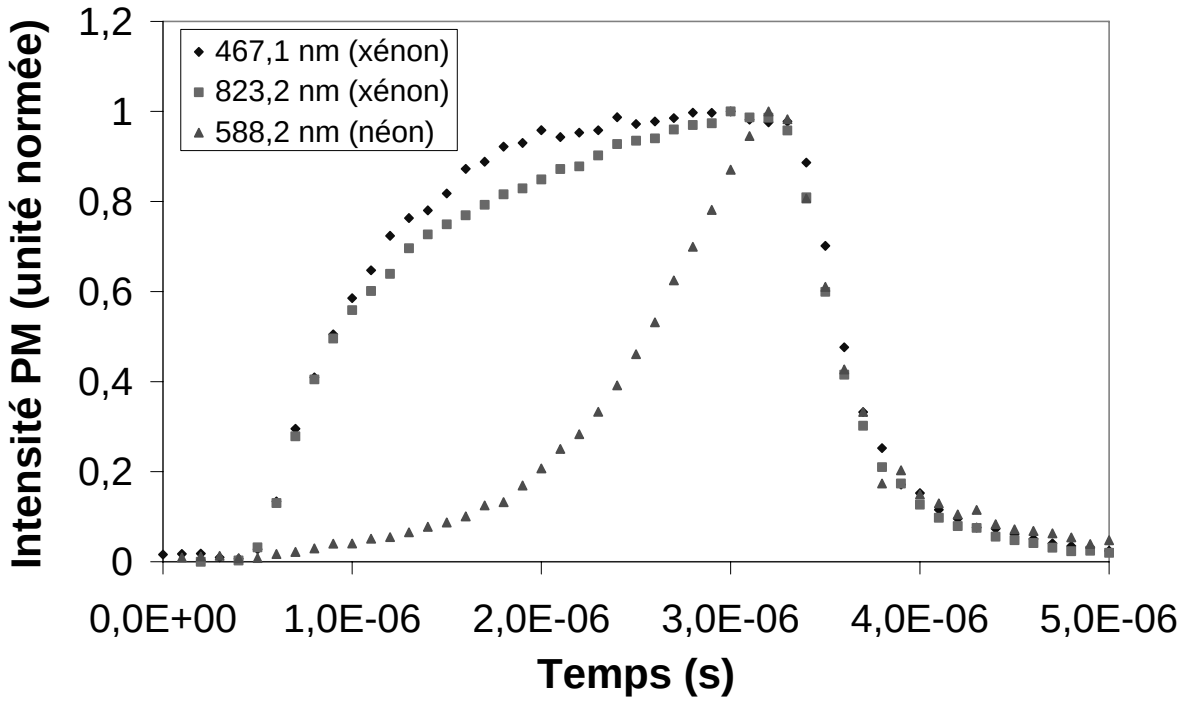


Figure 73: évolution temporelle de quelques raies du xénon et du néon sans transformateur de sortie sur Gecopulse.

En l'absence de transformateur de sortie, on constate que la puissance reçue par l'enseigne est très proche de la puissance fournie à GECOPULSE II (figure 74). En outre, on n'observe pas de passage à l'état filamentaire. Cependant, la forte production de VUV (liée à l'augmentation de la durée d'impulsion) reste contrebalancée par la diminution de fréquence nécessaire au maintien d'une puissance constante. L'éclairement (figure 75), mesuré dans des conditions similaires sur une enseigne scellée, diminue ainsi de façon très progressive sur une plage allant de 2µs à 8 µs (durée maximum pour ce prototype). On notera en regard de ce graphique qu'en dessous de 1µs, les valeurs d'éclairement chutent très fortement, conséquence de l'absence d'une émission de post-décharge significative suite à une impulsion « très » courte.

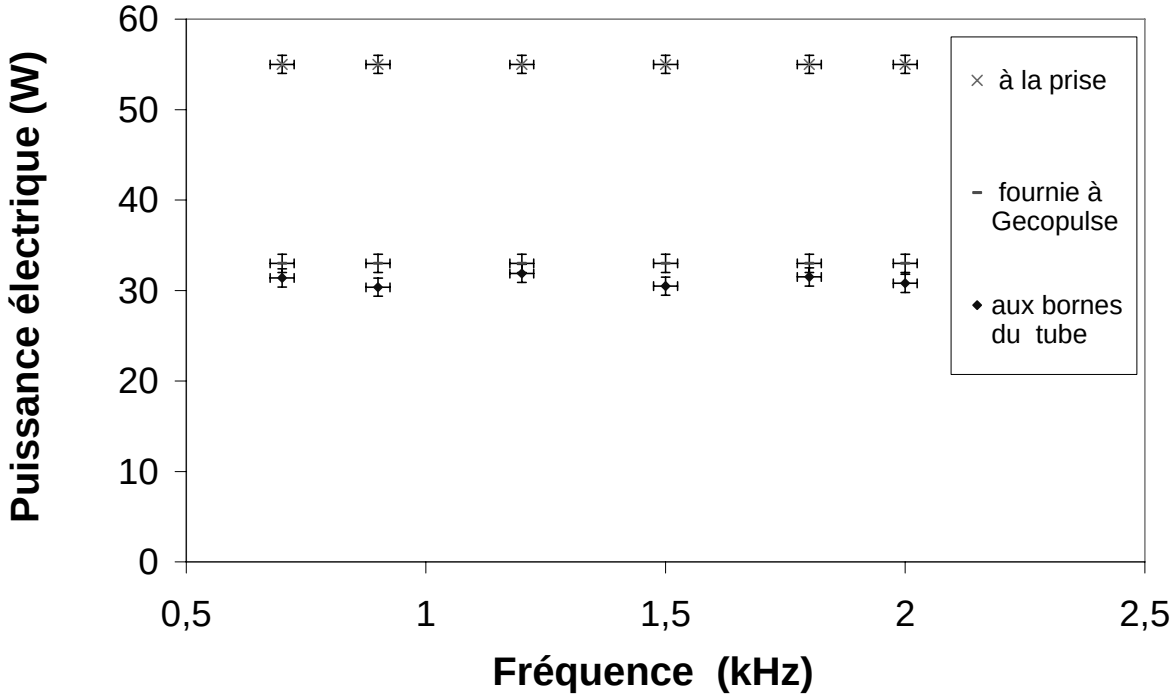


Figure 74: distribution de puissance électrique à différents niveaux du dispositif expérimental selon la fréquence. Tube scellé néon-xénon (1% de xénon) à 45mbar.

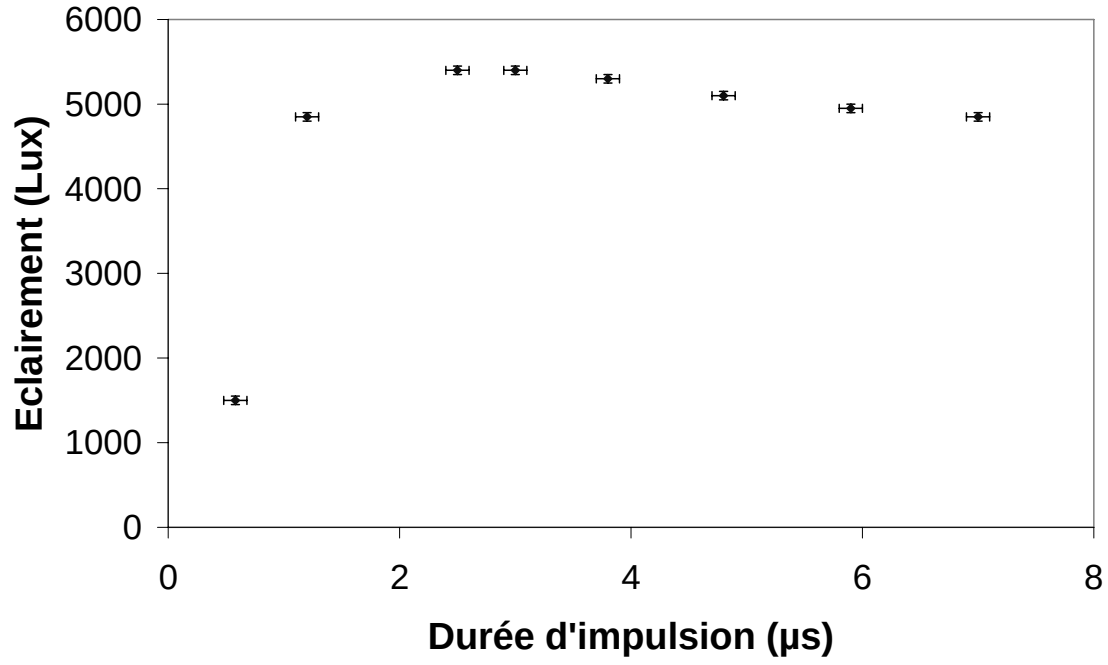


Figure 75: allure de l'éclairement selon durée d'impulsion lorsque l'excitation pulsée kV est fournie directement par Gecopulse sans transformateur de sortie. Tension appliquée : 1kV. Puissance prise: 55W. Enseigne scellée néon-xénon (1% de xénon) à 45 mbar.

4. Conclusion partielle

Dans cette partie, il est apparu que la fréquence de l'excitation impulsionnelle joue un rôle important pour l'allumage de la décharge. En effet, en régime impulsionnel, chaque impulsion arrive dans un milieu qui n'est pas isolant, mais dans lequel subsiste une densité électronique résiduelle dont la valeur augmente avec la fréquence du signal d'excitation. Grâce à cet effet mémoire, les tensions de claquage de la décharge peuvent être abaissées, et l'allumage du plasma est accéléré.

On a également démontré que la valeur de la durée d'impulsion possède une forte influence sur la production de VUV post-décharge : effectivement, de fortes durées d'impulsions créent dans le milieu des densités d'ions de xénon atomiques importantes, ce qui favorise la production d'ions moléculaires. Cependant, pour maintenir une puissance constante à la prise, il est nécessaire de diminuer la fréquence. A cause de cela, l'élargissement de la durée d'impulsion s'accompagne d'une forte diminution du flux VUV moyen et, pour des pressions de quelques dizaines de mbar, d'une amplification de la contraction due à la pression conduisant finalement à la formation d'une décharge filamentaire. La conséquence est une forte baisse d'excitation du luminophore. La suppression du transformateur de sortie, en faisant disparaître les pertes fers, a permis de limiter significativement la diminution du flux VUV et la contraction de la décharge. Cependant, un tel système peut poser des problèmes de compatibilité électromagnétique entre l'étage de commande de GECOPULSE II (signaux TTL) et son étage de puissance (fonctionnant alors au kV) ; il s'agira donc sans doute à l'avenir de définir et de concevoir un transformateur ayant le minimum de pertes dans la bande de fréquence que l'on souhaite utiliser. On a également pu constater que l'utilisation d'impulsions très courtes n'est pas efficace à cause d'une quasi absence de rayonnement VUV post-décharge.

C. Etude du vieillissement

Un autre élément à prendre en compte pour évaluer la potentialité des enseignes néon-xénon à remplacer les enseignes au mercure est leur comportement dans le temps. Actuellement, les tubes fluorescents à cathodes froides atteignent des durées de vie supérieures à 10 000 heures. Cette partie se propose de présenter l'étude faîte sur la durée de vie des enseignes néon-xénon en fonction de la pression du mélange et de sa composition.

1. Facteurs limitants

a) Pulvérisation cathodique

Dans un tube fluorescent à cathode froide, les ions et les neutres rapides peuvent générer la pulvérisation progressive du matériau de l'électrode. On pourra consulter la référence [Péd_1999] pour plus de détails sur les mécanismes de la pulvérisation. Ce phénomène est l'un des principaux facteurs limitant la durée de vie des enseignes au mercure basse pression. Dans sa thèse de doctorat, Hugues Capdeville [Cap_2001] a présenté le calcul du taux de pulvérisation cathodique pour deux mélanges binaires de gaz rares (néon-argon et néon-xénon). Les conditions de simulations prennent en compte des tubes munis d'électrodes planes de fer pur. La distance inter-électrodes est de 0.5 cm et la pression de 6 mbar. La densité de courant est fixée à $6\text{mA}.cm^{-2}$. Les résultats obtenus (figure 76) montrent une influence néfaste du pourcentage de néon sur la pulvérisation cathodique, ce qui suggère qu'un moyen de limiter la pulvérisation est d'utiliser des mélanges contenant un faible pourcentage de néon (de l'ordre de 10 %). Dans ces travaux, il est cependant précisé que la rédéposition des particules de métal sur l'électrode n'a pas été prise en compte pour le calcul du taux de pulvérisation des électrodes, et que cela pourrait biaiser les résultats. La redéposition consiste en la diffusion à la cathode de particules métalliques thermalisées, et dépend donc de la densité de neutres [Cap_2001]. Expérimentalement, nous avons montré qu'une forte densité de néon permet d'améliorer, certainement en accélérant la thermalisation des particules pulvérisées, la durée de vie des électrodes. Nous reviendrons sur ce résultat ultérieurement.

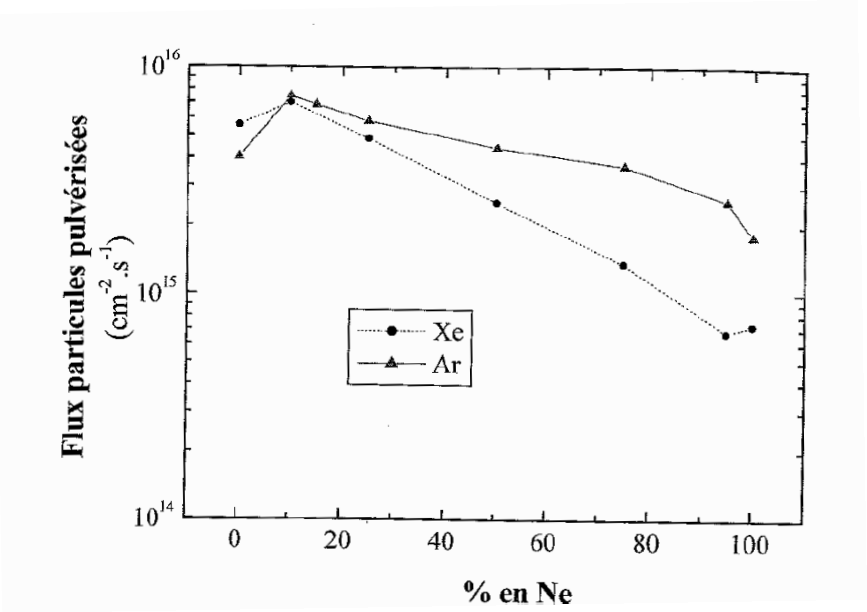


Figure 76: flux de particules pulvérisées pour deux mélanges (néon-argon et néon-xénon) en fonction du pourcentage du gaz lourd. Source protégée [Cap_2001].

b) Piégeage du xénon

Un facteur limitant également la durée de vie d'une décharge néon-xénon est le piégeage du xénon par incrustation aux parois de l'ampoule ou bien aux électrodes. Ce phénomène a été retenu pour expliquer l'évolution de la couleur de la décharge, qui passe du bleu-violet (produit par les raies visibles du xénon) au rouge (produit par les raies visibles du néon), lors des premières expériences de vieillissement menées au GREMI ([Cap_2001], [Rob_2005]) sur des enseignes néon-xénon basse pression. La baisse de la pression partielle de xénon par piégeage se traduit par la diminution du rayonnement VUV mais également par une diminution de la probabilité de désexcitation du néon par quenching, ce qui favorise l'apparition de raies d'émission du néon. Des études ([Leh_2007], [Dip_2007]) sont en cours pour déterminer les potentialités d'électrodes creuses grillagées ou céramiques dans la limitation de la collection du xénon par les électrodes.

2. Expériences à basse pression

Dans un premier temps, il est utile de présenter les résultats obtenus sur le comportement dans le temps d'un tube muni d'électrodes creuses (fer-nickel/ BaF_2) contenant 10 mbar d'un mélange de 90% de néon et 10% de xénon (soit 1 mbar de xénon). L'excitation est de type pulsée (largeur d'impulsion : 2µs ; fréquence : 4 kHz). Conformément à ce que l'on vient d'évoquer, une pulvérisation importante des électrodes est observée au cours de l'expérience. Cette pulvérisation est à l'origine d'un dépôt de métal sur les parois de l'enseigne à proximité des électrodes (voir photographie de la figure 77). La dégradation des électrodes compromet l'établissement de la décharge qui stoppe d'elle-même 500 heures environ après allumage.

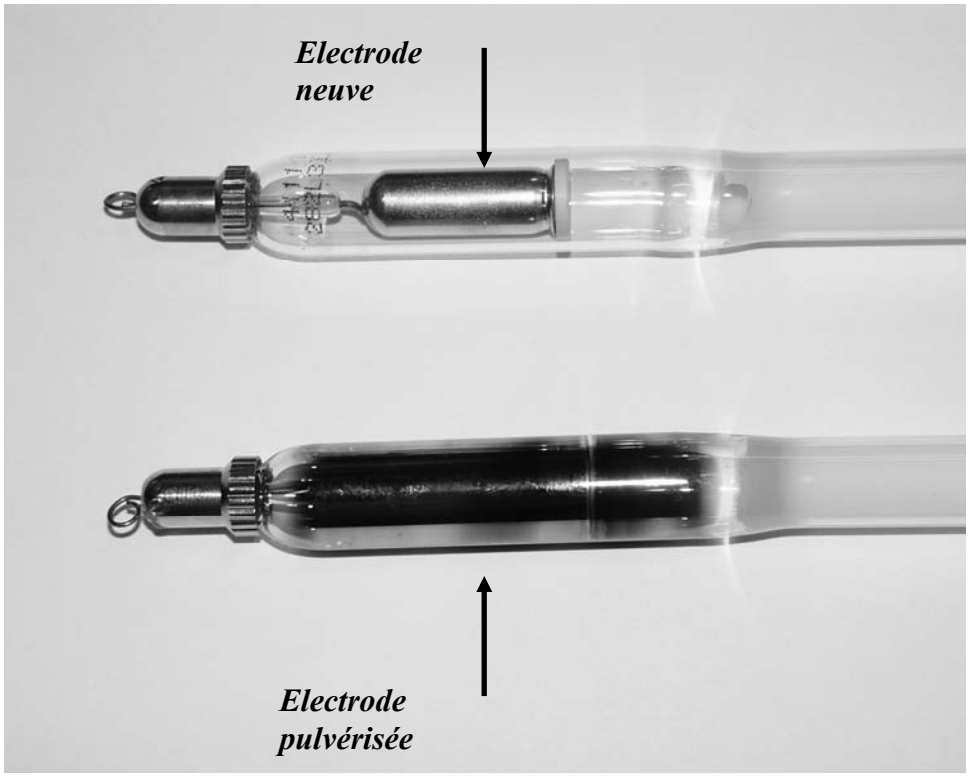


Figure 77: dépôt métallique entourant l'électrode d'une enseigne basse pression (10mbar) après 500 heures de fonctionnement. Comparaison avec une électrode neuve.

Si l'on s'intéresse aux valeurs d'éclairement (en Lux) mesurées sur le luminophore pendant l'expérience, on voit une forte chute de la luminosité de l'enseigne au cours des 200 premières heures de fonctionnement (figure 78, courbe à 10% de xénon). Au-delà, on observe une élévation brutale de la valeur d'éclairement fournie, et une dérive rapide des coordonnées chromatiques (figure 79 et 80, courbe à 10% de xénon). La chute de l'éclairement au cours des 200 premières heures peut être attribuée au piégeage progressif du xénon. L'augmentation brutale de la luminosité, accompagnée d'une forte variation des coordonnées chromatiques, traduit l'augmentation des probabilités de désexcitation radiative du néon, qui subit de moins en moins la désexcitation par quenching avec le xénon.

Afin de palier le problème de disparition du xénon, un tube à 10 mbar contenant 30% de xénon (soit 3 mbar) a été réalisé et mis à vieillir dans les mêmes conditions d'excitation électrique. Les résultats en éclairement sont visibles sur la figure 78 (courbe à 30%). On remarque que la luminosité diminue nettement plus lentement. Par ailleurs, on observe que les coordonnées chromatiques (figure 79 et 80, courbes à 30%) évoluent peu au cours de l'expérience. Ainsi, la disparition du xénon peut être compensée par l'utilisation d'une pression partielle suffisante de ce gaz. Par contre, le phénomène de pulvérisation des électrodes reste présent, provoquant l'arrêt de la décharge quelques centaines d'heures seulement après l'allumage.

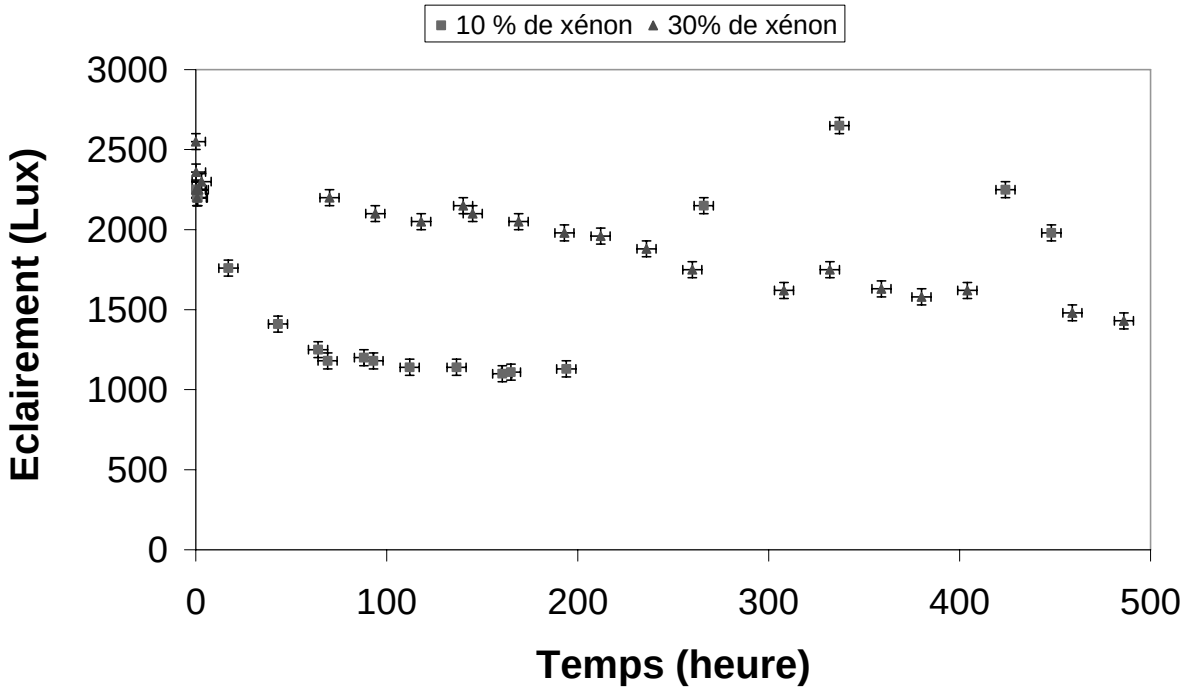


Figure 78: valeur d'éclairement en fonction du temps pour deux mélanges néon-xénon à 10 mbar contenant respectivement 10 et 30 % de xénon.

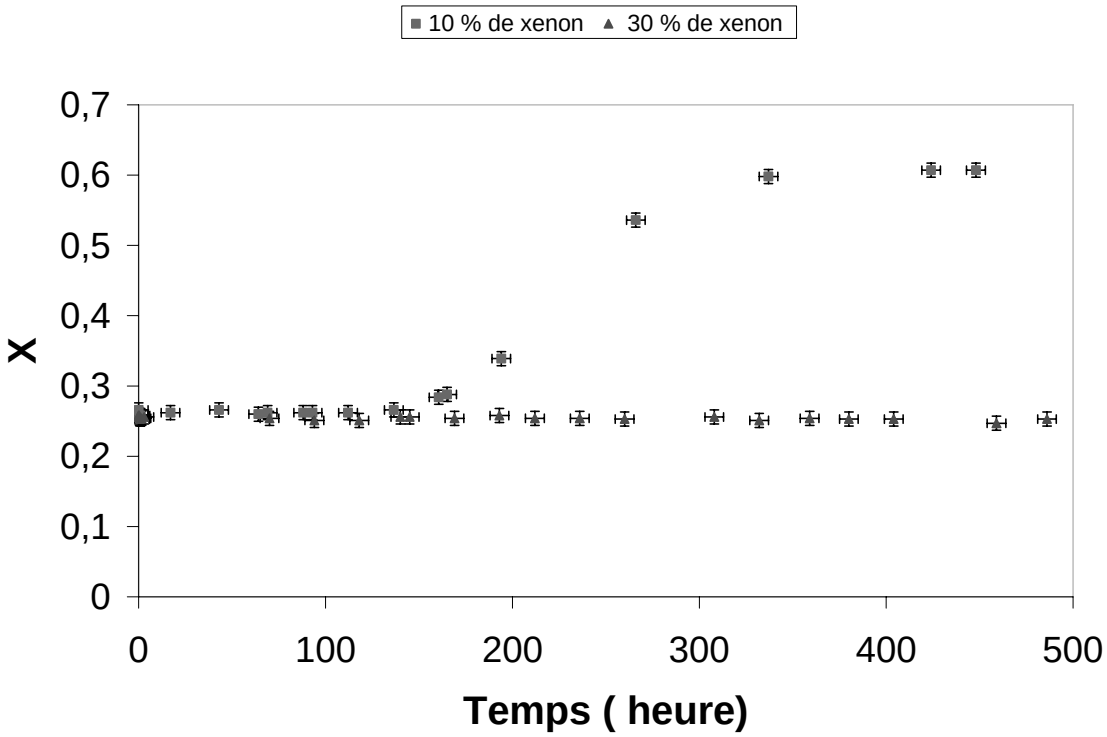


Figure 79: coordonnée x en fonction du temps pour deux mélanges néon-xénon à 10 mbar contenant respectivement 10 et 30 % de xénon.

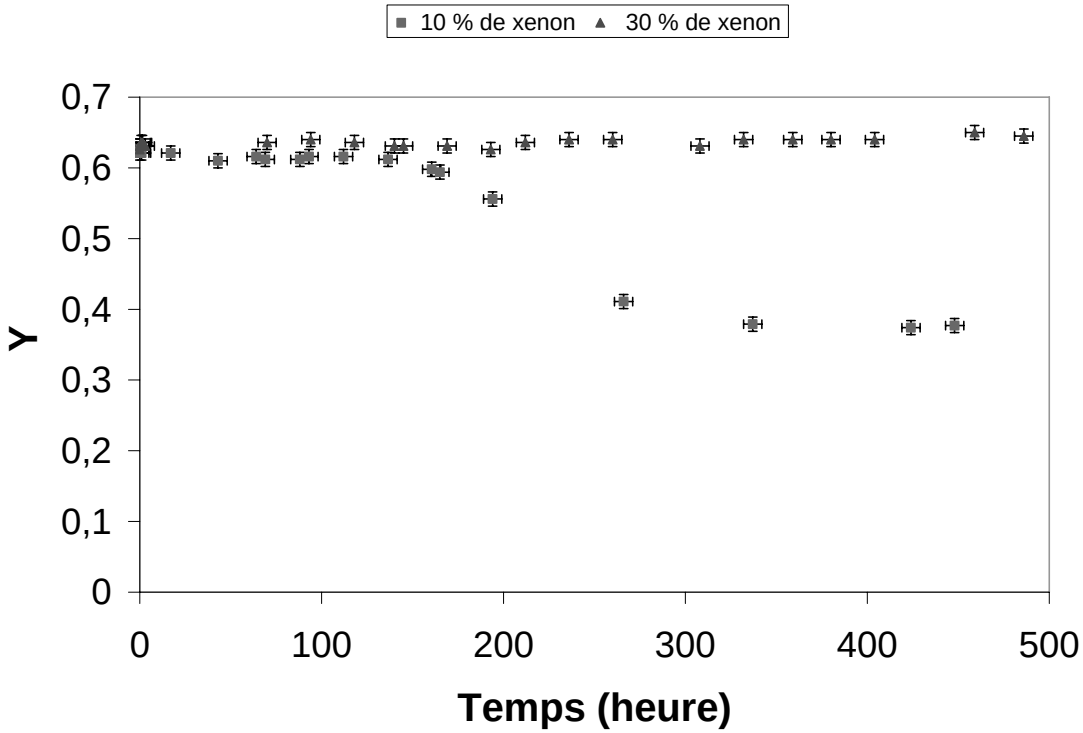


Figure 80: coordonnée y en fonction du temps pour deux mélanges néon-xénon à 10 mbar contenant respectivement 10 et 30 % de xénon.

3. Expériences à pression intermédiaire

Comme on a pu le vérifier au travers des résultats obtenus au cours de la présente étude, l'utilisation d'un mélange néon-xénon à pression intermédiaire contenant une forte proportion de néon et une faible proportion de xénon est une condition nécessaire à l'optimisation de la production de VUV atomique via la recombinaison dissociative d'ions moléculaires. Ainsi, un tube contenant un mélange de 95% de néon et 5% de xénon à 50 mbar (soit 2.5 mbar de xénon) a été réalisé et mis en vieillissement sous excitation impulsionnelle (largeur d'impulsion : 2µs ; fréquence d'excitation : 4kHz). L'expérience a été menée sur 3000 heures.

Concernant les relevés photométriques (figure 81), on note qu'au bout de 3000 heures, le flux conserve une valeur proche de sa valeur de départ. Les coordonnées chromatiques conservent en outre des valeurs stables (figure 82). Ceci est une conséquence attendue de l'utilisation d'une pression partielle de xénon de 2.5 mbar, qui permet de limiter les effets du piégeage, comme pour les enseignes à basse pression contenant un fort pourcentage de xénon. Par ailleurs, l'absence de pulvérisation des électrodes a permis à l'enseigne de fonctionner jusqu'à l'arrêt volontaire de l'expérience, après 3000 heures de marche. Ainsi, malgré une forte proportion de néon, l'augmentation de la pression de mélange permet de réduire considérablement la pulvérisation des électrodes. Ce résultat est sans doute lié à la redéposition de particules de métal sur l'électrode. L'augmentation de la pression dans l'enseigne permet vraisemblablement d'accélérer la thermalisation des particules pulvérisées, et de favoriser leur redéposition sur la cathode [Cap_2001].

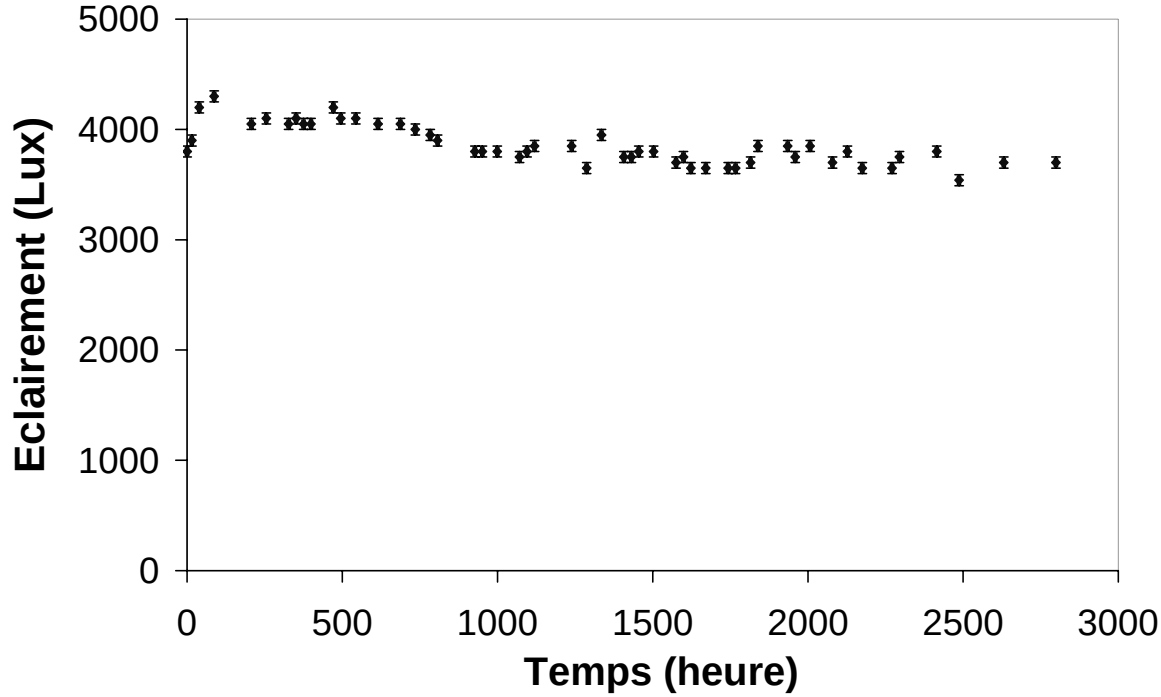


Figure 81: valeur d'éclairement en fonction du temps pour un mélange néon-xénon à 50 mbar contenant 5% de xénon.

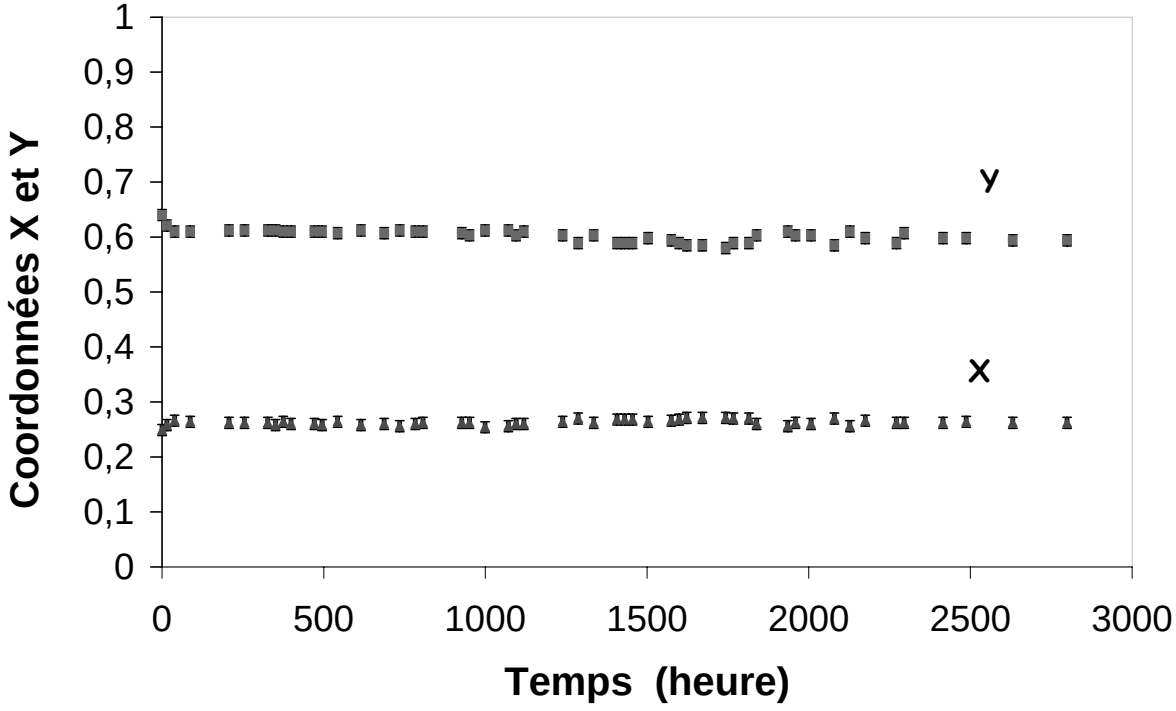


Figure 82: coordonnées x et y en fonction du temps pour un mélange néon-xénon à 50 mbar contenant 5% de xénon.

4. Conclusion partielle

Les mesures de vieillissement ont montré l'intérêt des décharges à pressions « intermédiaires » (de l'ordre de quelques dizaines de mbar). En effet, dans un mélange néon-xénon à 50 mbar contenant 5% de xénon, la pression partielle de xénon (2.5 mbar) est suffisante pour limiter les effets du piégeage du xénon aux électrodes ou aux parois. L'utilisation d'une pression « intermédiaire » permet de favoriser la redéposition des particules de métal arrachées aux électrodes, et d'éviter la pulvérisation de ces dernières, qui est l'un des facteurs principaux limitant la durée de vie des enseignes basse pression. Ainsi, on a pu atteindre une durée de fonctionnement de 3000 heures avec un éclairement quasiment constant.

D. Conclusion du chapitre

Les études paramétriques sur les décharges néon-xénon ont permis de dégager des conditions de fonctionnement intéressantes. D'après ces études, la configuration la plus adaptée est celle d'un tube renfermant un mélange Penning de néon-xénon avec un taux de xénon de quelques pourcents à une pression totale de mélange entre 40 et 60 mbar. Le pourcentage exact doit résulter d'un compromis entre les performances en éclairement et la durée de vie. L'excitation impulsionnelle la plus adéquate consiste en une impulsion de quelques µs (2 ou 3) à quelques kHz.

On se propose de comparer une décharge répondant à ces caractéristiques avec une décharge Ar/Ne/Hg alimentée par un ballast classique. Le graphique de la figure 83 présente les mesures de l'éclairement provenant d'un tube sans mercure et celles provenant d'un tube néon-xénon à 60 mbar (1% de xénon). Tout d'abord, on remarque que la décharge en mercure a un comportement linéaire dans la gamme de puissance étudiée, ce qui n'est pas le cas de la décharge néon-xénon. Comme on l'a vu, mis à part du côté des très basses puissances (quelques W), l'efficacité d'une décharge pulsée de néon-xénon diminue avec la puissance électrique appliquée, ce qui explique l'augmentation de l'écart observé dans la valeur de l'éclairement fourni entre mercure et sans mercure lorsque la puissance électrique s'élève. Typiquement, les enseignes mercure utilisées avec le luminophore S15 ont une efficacité de 30 ou 35 lm/W (Annexe B). Pour une dizaine de Watt électrique consommés à ses bornes, l'enseigne néon xénon à 60 mbar atteint une efficacité de 13 lm/W, ce qui correspond à environ 40-45% de l'efficacité du tube mercure.

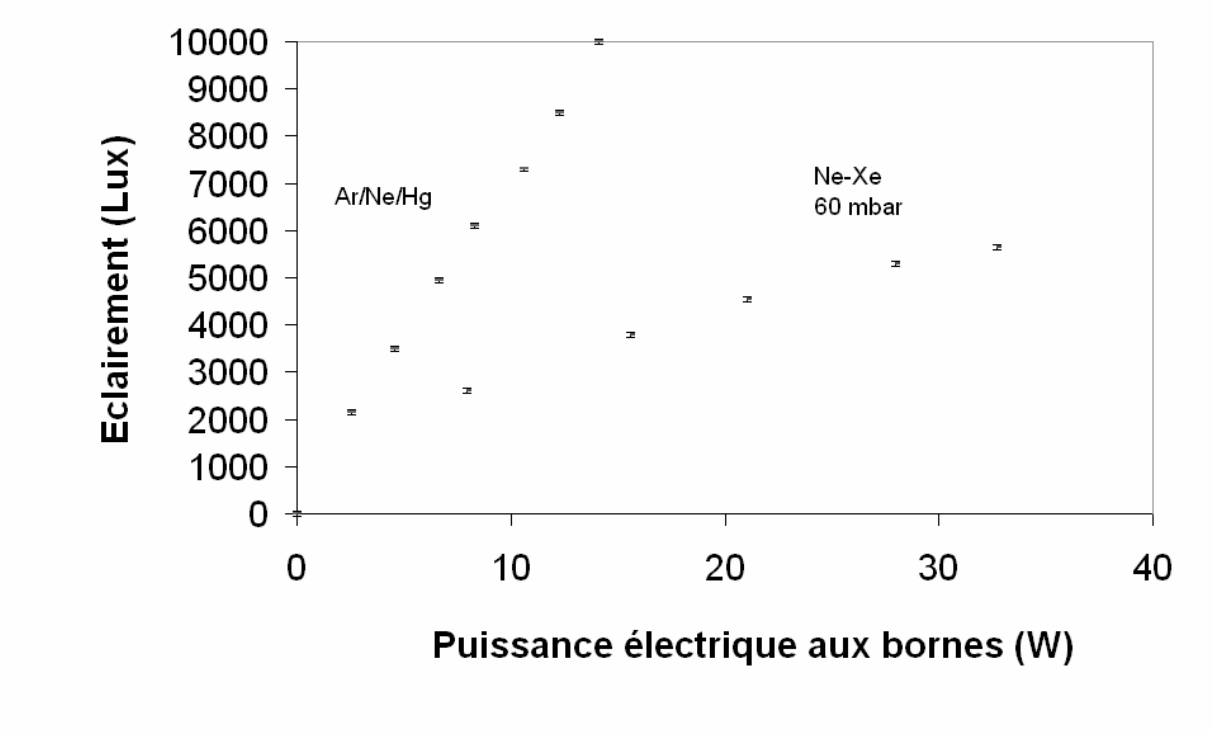
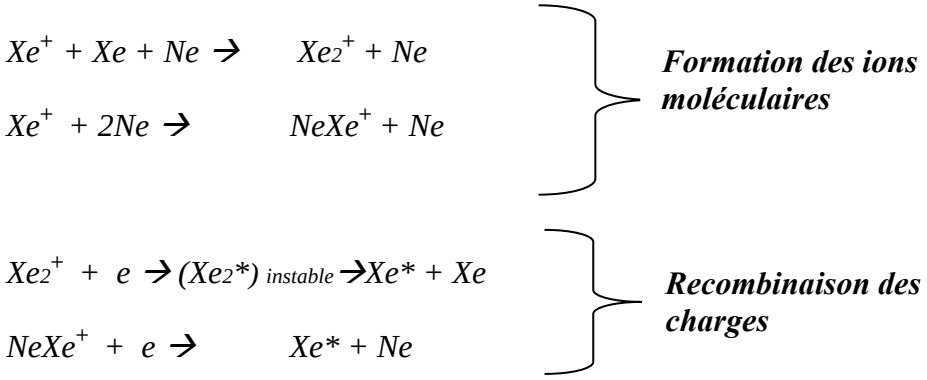


Figure 83: efficacité d'un tube néon-xénon à 60 mbar comparée à l'efficacité d'un tube Ar/Ne/Hg classique selon la puissance appliquée aux bornes.

V. Synthèse et perspectives

Les travaux de thèse présentés ont porté sur l'étude et le développement d'enseignes lumineuses sans mercure en régime d'impulsions électriques. L'objectif était de proposer des solutions technologiques aux décharges au mercure, largement employées dans la signalisation lumineuse publicitaire ou architecturale, afin notamment d'anticiper les évolutions de la norme RoHS.

Cette étude aura dans un premier temps permis de préciser les ***mécanismes mis en jeu dans la production de rayonnement VUV*** en régime d'excitation impulsionnelle. Sous le régime pulsée, la production de rayonnement VUV issue de la transition résonante la plus intense du xénon (147 nm) se structure dans le temps en deux émissions distinctes : une émission dite de décharge, ayant lieu pendant la durée de l'impulsion, et une émission de « post-décharge », apparaissant entre deux impulsions. Au cours de la décharge, le niveau $Xe(1s_4)$ se dépeuple à la fois par désexcitation radiative sur le fondamental (raie à 147 nm), et par excitation sur des niveaux supérieurs. L'existence de cette excitation successive se solde par la production de rayonnements visibles ou IR inaptes à exciter les poudres de luminophore. Les processus d'ionisation du xénon sont également favorisés. L'émission post-décharge a lieu après la fin de l'impulsion de courant. Cette émission perdure sur une durée de quelques centaines de microsecondes, et peut représenter plusieurs fois la quantité de VUV émise au cours de la décharge. Cette production de VUV correspond à un repeuplement du niveau $Xe(1s_4)$ après la fin de l'impulsion. On a vérifié, grâce à un modèle simplifié développé sous scilab, que l'allure temporelle du rayonnement enregistré est compatible avec un repeuplement de $Xe(1s_4)$ par une recombinaison dissociative d'ions moléculaires, qui est le mode de recombinaison de charges communément admis comme prépondérant dans des décharges luminescentes normales à faible densité électronique et quelques dizaines de Torr de pression. Ces ions moléculaires se forment à partir de l'ion atomique Xe^+ par l'intermédiaire de réactions faisant fortement intervenir la densité des neutres, en particulier le néon :



Les ***études paramétriques*** ont porté essentiellement sur trois types de paramètres : les paramètres physiques (pression de mélange, proportion des gaz, diamètre du tube), les paramètres d'ordre électrique (fréquence d'excitation, durée d'une impulsion), et enfin le temps de fonctionnement. L'objectif des ces études paramétriques était de comprendre l'influence de ces paramètres et de trouver la meilleure combinaison possible afin d'optimiser le flux lumineux, l'efficacité énergétique, et la durée de vie des enseignes.

Il est apparu expérimentalement que la pression partielle de néon est un facteur influençant fortement le flux VUV émis par le xénon en phase de post-décharge. Ceci est cohérent avec les équations de formations des ions moléculaires présentés ci-dessus, qui dépendent fortement de la densité de néon (notamment l'exciplexe ionique $NeXe^+$ dont la formation dépend de $[Ne]^2$). Il est apparu par ailleurs que la proportion de xénon est un élément important dont dépendent fortement les caractéristiques de la décharge : une trop forte pression partielle de xénon nuit à l'homogénéité et au maintien de la décharge. Ceci peut s'expliquer par le fait que le coefficient d'émission secondaire du couple xénon-électrode activée est 1000 fois inférieur au coefficient d'émission secondaire du couple néon-électrode activée. A l'inverse, si la proportion de xénon est trop faible, le phénomène de quenching du Ne* par le Xe baisse, ce qui se traduit par l'augmentation de la désexcitation de Ne* par transitions radiatives et par une forte dérive des coordonnées chromatiques de l'enseigne. Ainsi, il est apparu qu'une proportion de xénon de 1 % était suffisante pour assurer un quenching efficace sans compromettre le fonctionnement de la décharge sur une large plage de pression (de 10 à 100 mbar). Ces observations ont justifié notre intérêt à étudier plus en détail les potentialités d'une décharge 1%xénon 99%néon en fonction de la pression de mélange. On a montré que la raie à 147 nm est la source majoritaire d'excitation du luminophore sur la plage 10-100mbar. En cohérence avec les résultats du modèle simplifié élaboré sous scilab, on a pu montrer expérimentalement, en enregistrant le signal émis par un petit élément de surface de plasma, que l'augmentation de la pression de mélange entraîne localement l'élévation de la production de VUV post-décharge. Parallèlement à l'augmentation du rayonnement VUV enregistré, l'émission du luminophore augmente également jusqu'à quelques dizaines de mbar mais finit par atteindre une valeur plafond. Cette saturation résulte d'une contraction progressive de la décharge lorsque la pression du mélange augmente. L'apparition de cette contraction dépend du produit de la pression de mélange par le rayon du tube. La valeur critique de ce produit, au-delà de laquelle la décharge 1%xénon 99%néon se contracte, a été estimée à 20 Torr.cm, valeur qui est atteinte, dans une ampoule de 13 mm de diamètre, pour une pression de 40 mbar. On a montré expérimentalement que la réduction du diamètre des tubes permet de ne pas dépasser la valeur critique de P.r tout en augmentant la pression de mélange au-delà de 40 mbar. D'après les mesures, l'efficacité dépend à la fois de la pression du mélange et de la puissance électrique. Il est apparu que chaque pression présente un maximum d'efficacité qui lui est propre, mais qui est atteint dans tous les cas pour une puissance électrique de l'ordre de quelques W. Compte tenu de cette observation, il apparaît plus intéressant en terme d'efficacité de partager une puissance électrique donnée entre plusieurs lampes (pour les faire fonctionner chacune à basse puissance) que de l'injecter à une seule lampe (qui va fonctionner alors avec une faible efficacité).

L'étude de l'influence des paramètres électriques a mis en évidence certains mécanismes propres à l'excitation impulsionnelle. Tout d'abord, l'utilisation d'un signal impulsionnel génère l'existence d'un « effet mémoire », lequel est dépendant de la fréquence des impulsions : chaque impulsion arrive dans un milieu non isolant, mais dans lequel subsiste une densité électronique résiduelle générée par le pulse précédent. Cette densité résiduelle augmente avec la fréquence et facilite l'allumage du plasma. Des tests préliminaires ont été menées pour exploiter ce phénomène par l'utilisation de trains d'impulsions (Annexe C). Ensuite, on a vu une forte influence de la durée d'impulsions: l'élévation de la densité d'ions, liée à l'allongement de la durée des impulsions de courant, permet d'augmenter la formation d'ions moléculaires et donc la production de rayonnement VUV suite au repeuplement du $Xe(1s_4)$ par recombinaison dissociative. Par contre, l'augmentation de la durée d'impulsions nécessite une diminution de fréquence qui

augmente les pertes fers, diminue la puissance couplée au plasma, et, lorsque la pression est élevée, entraîne le passage de la décharge à l'état filamentaire. Ceci nuit fortement à l'excitation du luminophore et ce malgré la très forte amélioration du flux VUV produit localement. Ces observations s'inscrivent dans une problématique très proche de celle rencontrée lors des études paramétriques en pression : on s'aperçoit en effet que les solutions permettant de favoriser les réactions de production du VUV génèrent une contraction de la décharge pénalisante. On notera que certains travaux [Tod_2007] ont montré comment l'utilisation d'électrodes externes permet d'améliorer la diffusion des métastables vers les parois de tubes à décharge en xénon. Là aussi, une étude préliminaire au GREMI a montré la possibilité d'allumer, dans une enseigne identique à celles utilisées dans cette thèse, une décharge de xénon pur à plusieurs dizaines de mbar de pression à l'aide d'électrodes externes (Annexe D).

Enfin, dernier paramètre étudié, la durée de fonctionnement a été fortement améliorée par l'utilisation de pressions de mélange relativement élevées. En effet, deux phénomènes principaux contrôlent la durée de vie d'une enseigne en néon-xénon: le piégeage du xénon, par incrustation aux parois ou aux électrodes, et la pulvérisation cathodique. Les études ont montré qu'une pression partielle de xénon de quelques mbar suffit à limiter les effets du piégeage du xénon sur la constance du flux lumineux émis par le luminophore. Cet ordre de pression partielle est typiquement ce que l'on a dans une décharge à quelques dizaines de mbar de pression de mélange et quelques pourcents de xénon. Par ailleurs, la pulvérisation des électrodes, qui, à basse pression, compromet le fonctionnement de la décharge au bout de quelques centaines d'heures de fonctionnement seulement, n'a pas été détectée dans les décharges haute pression même après plusieurs milliers d'heures de fonctionnement. Cette absence de pulvérisation est sans doute due à la redéposition des particules pulvérisées, dont la thermalisation est fortement favorisée par la pression de mélange.

Ainsi, on peut dire que cette étude aura permis de mieux cerner les principaux mécanismes entrant en jeu dans la production de rayonnement VUV par une décharge de néon-xénon en régime pulsée. La réalisation d'un modèle simplifié de cinétique réactionnelle a mis clairement en évidence le rôle de la recombinaison dissociative dans cette production de VUV. Les études paramétriques, corroborant les résultats du modèle, mènent à la conclusion que l'augmentation des densités de neutres, mais également l'augmentation de la densité d'ions atomiques, sont un moyen efficace d'augmenter la production de rayonnement VUV. Mais, dans les deux cas, la contraction de la décharge ne permet pas d'en bénéficier complètement. Afin d'améliorer l'excitation du luminophore, les recherches devront à l'avenir déterminer le moyen de limiter la contraction de la décharge. Ceci peut passer, comme on l'a vu, par un choix adapté de diamètre de tube, mais également peut être par l'utilisation d'électrodes externes. En outre, la limitation des pertes d'énergie sera une voie de recherche à poursuivre : les sources de pertes semblent être essentiellement le rayonnement IR discret du xénon, mais également l'échauffement des électrodes par bombardement ionique et l'échauffement du verre par effet Stokes. La limitation des pertes par effet Stokes pourrait passer par l'utilisation d'un rayonnement VUV moins dur que 147 nm. Le rayonnement excimère à 173 nm pourrait constituer un bon candidat, mais l'obtention d'un tel rayonnement nécessite une élévation importante de la pression dans le tube, et l'apparition du phénomène de contraction qu'il faudra résoudre. Par ailleurs, la question de l'adaptation des poudres de luminophore au rayonnement atomique du xénon reste entière. Nous avons utilisé une poudre de luminophore proposée par Aupem Sefli, car largement utilisée en pratique. L'observation du spectre d'excitation de poudres de chimie différentes permet de penser que certaines d'entre elles pourraient être mieux adaptées au rayonnement à 147

nm, comme la poudre $CeMgAl_{11}O_{19}:Tb$ (figure 84). Le développement de nouvelles poudres, spécifiquement adaptées à 147 nm, apportera peut-être à l'avenir d'autres possibilités.

Enfin, et bien que les applications d'enseignes lumineuses à flux lumineux important ne semblent pas encore accessibles à un coût énergétique raisonnable par les décharges pulsée néon-xénon, ces dernières pourraient trouver des débouchés dans certaines applications basse puissance et faible flux (balisage lumineux par exemple), ou bien encore dans des applications nécessitant un allumage instantané et indépendant des conditions de température extérieure (éclairage d'évacuation d'urgence par exemple).

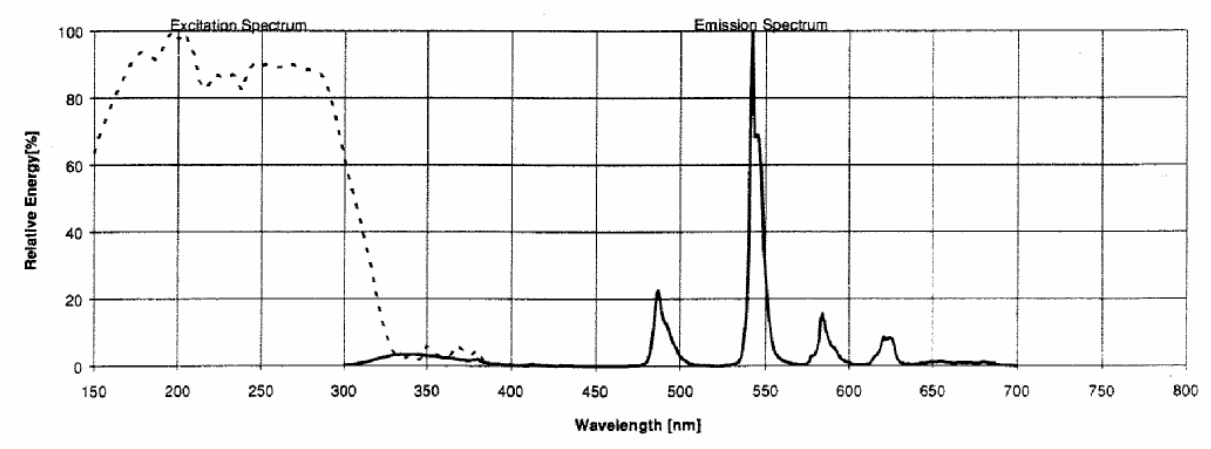


Figure 84: spectre d'excitation et d'émission du $CeMgAl_{11}O_{19}:Tb$ (donnée OSRAM).

VI. Bibliographie

[Aga_1995] M. Agache, *Modélisation de la phase d'amorçage d'une décharge électrique dans un gaz*, 102 p, thèse de Doctorat : physique des gaz et des plasmas, Université Paris XI Orsay, 1995.

[Bar_1969] Yu B Baranov and K N Ul'yanov, Zh. Tekh. Fiz **39** (1969) 249
Yu B Baranov and K N Ul'yanov, Sov. Phys.- Tech.Phys. **14** 176

[Bea_2007] T.Beaudette, P.Guillot, B.Caillier, Proceedings of the 11th International Symposium on the Science and Technology of Light Sources, May 20th-24th 2007, Shanghai, China, pp397-398.

[Bel_2008] Sz Beleznai, G. Mihajlik, L. Balazs and P. Richter, J.Phys.D:Apll.Phys. **41** (2008) 115202.

[Brai_2000] N. St. J. Braithwaite, Plasma sources Sci. Technol. **9** (2000) 517-527.

[Bus_2006] R Bussiahn, S Gortchakov, H Lange and D Loffhagen, J.Phys.D :Appl.Phys. **39**(2006)66-72.

[Cap_2001] H Capdeville, Mesures et modélisation des décharges luminescentes à basses pressions: comportement électrique et pulvérisation des électrodes,177 p, thèse de doctorat : physique des gaz et des plasmas , université d'Orléans, 2001.

[Chit_2007] U. Chittka, S. Gruhlke, S. Schwan, M. Sorokin, J. Vorachen, Proceedings of the 11th International Symposium on the Science and Technology of Light Sources, May 20th-24th 2007, Shanghai, China, pp 293-294.

[Dip_2007] A.-C Dippel, T. Schneller, W. Lehman, R. Waser, Proceedings of the 11th International Symposium on the Science and Technology of Light Sources, May 20th-24th 2007, Shanghai, China, pp153-154.

[Dun_2003] Carolyn Dunmire, Chris Calwell, Andria Jacob, My Ton, Travis Reeder, and Vicki Fulbright, Mercury in Fluorescent Lamps: Environmental Consequences and Policy Implications for NRDC, Final Report for Natural Resources Defense Council, May 2003.

[Dya_2008] N A Dyatko, Y Z Ionikh, I V Kochetov, D L Marinov, A V Meshchanov, A P Napartovich, F B Petrov and S A Starostin, J. Phys. D: Appl. Phys. **41** (2008)1-14.

[Eck_1988] D.J. Eckstrom, H. H. Nakano, D.C. Lorents, and T.Rothem, J.Appl.Phys. vol. **64**,N° 4, (1988) 1679-1690.

[Ecr_2007] Diodes Electroluminescentes blanches et éclairage général : quel potentiel et quels problèmes ? Revue trimestrielle du réseau Ecrin, **66**, janvier 2007.

[Flo_2002] P. Floyd, P. Zarogiannis, M. Crane, S. Tarkowski, V. Bencko, and M. Postle, Risks to Health and the Environnement Related to the Use of Mercury Products, Rapport Finale pour la commission européenne, 9 aout 2002.

[Gol_1979] Yu B. Golubovskii et R. Sonneburg, Sov. Phys.-Tech.Phys. **24** 437, 1979.

[Gol_2003] Yu B. Golubovskii, H. Lange, V. A. Maiorov, I. A. Porokhova and V. P. Sushkov, J.Phys.D :Appl. Phys.**36** (2003)694-703.

[Gor_2003] S. Gortchakov , H. Lange, D. Uhrlandt, J.Appl. Phys., vol 93, N 12, 2003

[Hir_1997] Abdelhamid Hirech, Diagnostics et modélisation d'une cellule de panneau plasma couleur, Thèse de Doctorat, Toulouse 1997 .

[Hol_1947] T. Holstein, Phys. Rev., Vol.**72**, N°12, p1212-1233, 1947.

[Hol_1951] T. Holstein, Phys. Rev., Vol.**83**, N°6, p1159-1168, 1951.

[Jin_2007] M. Jinno and H. Motomura, Proceedings of the 11th International Symposium on the Science and Technology of Light Sources, May 20th-24th 2007, Shanghai, China, p 351-360.

[J.Phys.D_2007] J.Phys.D:Appl.Phys. Vol.**40**, N°3, 2007, special cluster on mercury free discharges for lighting.

[Kas_1968] W.H Kasner, Phys. Rev., **167**, N°1, 1968, p148-151.

[Ken_1962] C. Kenty, Phys. Rev. **126** ,1235 (1962)

[Kit_2004] S Kitsinelis, R Devonshire, M Jinno, K H Loo, D A Stone and R C Tozer, J.Phys. D: Appl. Phys. **37** (2004) 1630-1638.

[Kra_2007] M. Krames, Proceedings of the 11th International Symposium on the Science and Technology of Light Sources, May 20th-24th 2007,Shanghai, China, p 567-570.

[Leh_2007] W. Lehman, Proceedings of the 11th International Symposium on the Science and Technology of Light Sources, May 20th-24th 2007, Shanghai, China, p 85.

[Lev_1985] L.A. Levin, IEEE J.Quant.Electr.17, 2282 (1985).

[Lis_2004] G.G. Lister, J.E. Lawler, W.P. Lapatovitch and V.A.Godyak, Rev.Mod.Phys., **76**, N°2, (2004) p541-597

[LS_2007] Proceedings of the 11th International Symposium on the Science and Technology of Light Sources, May 20th-24th, Shanghai, China, 634 p, FAST-LS,2007.

[Meu_1995] J.Meunier, Ph.Belenguer, and J.P. Bœuf, J.Appl. Phys.**78** (2),731-745 (1995).

[Min_2000] Min B, Lee S H , Park H G, J. Vac. Sci. Technol. A, US vol.**18** p.349 (2000).

[Mor_2003] A Morozov, B Krylov, G Gerasimov, A Arnesen and R Hallin, J.Phys. D : Appl.Phys.**36** (2003) 1126-1134.

[Ney_1979] R.H. Neynaber and S.Y. Tang, J.Chem. Phys. **70** (1979)4272-4276.

[Péd_1999] Cecile Pédoussat, modélisation auto-cohérente de la pulverisation cathodique dans les décharges luminescentes basse pression, Thèse de doctorat :physique, Université Paul Sabatier, Toulouse, 1999.

[Petr_1999] G. Petrov and C M Ferreira,Phys. Rev. E **59** (1999) 3571

[Poi_1998] A.M Pointu, J. Perrin et J. Jolly, Plasmas froids de décharge- Propriétés électriques, Techniques de l'ingénieur, D-2830, 1998.

[Rai_1991] Y.P Raizer, Gas Discharge Physic, ed. Springer-verlag, 1991.

[Rob_2005] E. Robert, H. Sarroukh, C. Cachoncinlle, R. Viladrosa, V. Hochet, S. Eddaoui, and J.M. Pouvesle, Pure Appl.Chem., Vol.**77**, N° 2, (2005) 463-474.

[Sri_2003] A.M. Srivastava and C.R. Ronda, "Phosphors", The Electrochemical Society interface , 2003, vol. **12**, no2, pp. 48-51.

[Tag_2007] T. Taguchi, Proceedings of the 11th International Symposium on the Science and Technology of Light Sources, May 20th-24th 2007, Shanghai, China, p 571-573.

[Tis_1995] H. Tischler, étude spectroscopique et cinétique des excimères ioniques, 134 p, thèse de doctorat : mécanique des fluides - énergétique, Université de la Méditerranée, Aix-Marseille, 1995.

[Tod_2007] Y. Toda, S.Iwaki, Y. Imai, H. Kurokawa, H.Motomura, M. Jinno, Proceedings of the 11th International Symposium on the Science and Technology of Light Sources, May 20th-24th 2007, Shanghai, China, p 209-210.

[Uch_1999] S Uchida, H. Sugawara, Y Sakai, T. Watanabe and Byoung-Hee Hong, J.Phys. D: Appl.Phys.**33**(1999) 62-71

[Uhr_2005] D Uhrlandt , R Bussiahn, S Gortchakov, H Lange, D Loffhagen and D Nötzold, J.Phys.D : Appl.Phys.**38** (2005)3318-3325.

[Wie_1980] W. Wieme et J. Lenaerts, J. Chem. Phys., Vol. **72**, Issue 4, February 15, 1980, p.2708-2712.

[Zi_2007] G. Zissis, « Etat de l'art de la science et technologie des systèmes d'éclairage : Economie d'énergie et Développement Durable », JEEA 2007 ENS Cachan.

Annexes

A. Décrets

B. Caractéristiques enseigne verte Aupem

C. Excitation par trains d'impulsions

D. Décharge dans le xénon avec électrode externe

A. Décrets

Décrets, arrêtés, circulaires

TEXTES GÉNÉRAUX

MINISTÈRE DE L'ÉCOLOGIE ET DU DÉVELOPPEMENT DURABLE

Arrêté du 23 novembre 2005 relatif aux modalités de traitement des déchets d'équipements électriques et électroniques prévues à l'article 21 du décret nº 2005-829 du 20 juillet 2005 relatif à la composition des équipements électriques et électroniques et à l'élimination des déchets issus de ces équipements

NOR : *DEVP0540446A*

La ministre de l'écologie et du développement durable et le ministre délégué à l'industrie,

Vu le code de l'environnement, notamment le titre IV de son livre V ;

Vu le code de la santé publique, notamment son article R. 1333-27 ;

Vu le code du travail, notamment son article R. 231-51 ;

Vu le décret nº 87-59 du 2 février 1987 relatif à la mise sur le marché, à l'utilisation et à l'élimination des polychlorobiphényles et polychloroterphényles ;

Vu le décret nº 2005-829 du 20 juillet 2005 relatif à la composition des équipements électriques et électroniques et à l'élimination des déchets qui en sont issus,

Arrêtent :

Art. 1er. – Les stations de transit de déchets d'équipements électriques et électroniques et les sites de traitement de ces mêmes déchets répondent aux exigences fixées à l'annexe du présent arrêté.

Art. 2. – En application du dernier alinéa de l'article 21 du décret du 20 juillet 2005 susvisé, les déchets d'équipements électriques et électroniques collectés sélectivement font l'objet du traitement suivant :

1. Au minimum les substances, préparations et composants ci-après doivent être retirés de tout déchet d'équipements électriques et électroniques :

- condensateurs contenant du polychlorobiphényle (PCB), conformément au décret du 2 février 1987 susvisé ;
- composants contenant du mercure, tels que les interrupteurs ou les lampes à rétroéclairage ;
- piles et accumulateurs ;
- cartes de circuits imprimés de téléphones mobiles, et de tout appareil d'une manière générale si la surface de la carte de circuit imprimé est supérieure à 10 centimètres carrés ;
- cartouches de toner, liquide ou en pâte, ainsi que les toners de couleur ;
- matières plastiques contenant des retardateurs de flamme bromés ;
- déchets d'amiante et composants contenant de l'amiante ;
- tubes cathodiques ;
- chlorofluorocarbones (CFC), hydrochlorofluorocarbone (HCFC) ou hydrofluorocarbone (HFC), hydrocarbures (HC) ;
- lampes à décharge ;
- écrans à cristaux liquides (ainsi que leur boîtier le cas échéant) d'une surface supérieure à 100 centimètres carrés et tous les écrans rétroéclairés par des lampes à décharge ;
- câbles électriques extérieurs ;
- composants contenant des fibres céramiques réfractaires tels que décrits à l'annexe 1 de l'arrêté du 20 avril 1994 modifié relatif à la déclaration, la classification, l'emballage et l'étiquetage des substances ;
- composants contenant des substances radioactives à l'exception des composants en quantités ne dépassant pas les seuils d'exemption fixés au tableau A de l'annexe 13-8 du code de la santé publique ;
- condensateurs électrolytiques contenant des substances dangereuses (hauteur > 25 mm, diamètre > 25 mm ou volume proportionnellement similaire).

Les substances, préparations et composants précités doivent être éliminés ou valorisés conformément aux dispositions de l'article L. 541-2 du code de l'environnement.

2. Les composants ci-après de déchets d'équipements électriques et électroniques faisant l'objet d'une collecte sélective doivent être traités de la manière indiquée ci-dessous :

– tubes cathodiques : la couche fluorescente doit être enlevée ;
– équipements contenant des gaz préjudiciables à la couche d'ozone ou présentant un potentiel global de réchauffement climatique supérieur à 15, présents par exemple dans les mousses et les circuits de réfrigération. Ces gaz doivent être enlevés et traités selon une méthode adaptée. Les gaz préjudiciables à la couche d'ozone doivent être traités conformément au règlement (CE) n° 2037/2000 du Parlement européen et du Conseil du 29 juin 2000 relatif à des substances qui appauvrissent la couche d'ozone ;
– lampes à décharge : le mercure doit être enlevé.

3. Compte tenu de considérations environnementales et de l'utilité de la réutilisation et du recyclage, les points 1 et 2 sont appliqués de manière à ne pas entraver une bonne réutilisation et un bon recyclage de composants ou d'appareils entiers.

Art. 3. – Le traitement sélectif effectué par les producteurs d'équipements électriques et électroniques ou, le cas échéant, par les utilisateurs des équipements professionnels, permet d'atteindre globalement au plus tard le 31 décembre 2006, les objectifs de valorisation, de recyclage et de réutilisation suivants :

– le taux de valorisation est fixé à 80 % au moins en poids moyen par appareil pour les déchets d'équipements électriques et électroniques relevant des catégories 1 et 10 de l'annexe 1 du décret n° 2005-829 susvisé, à 75 % pour ceux relevant des catégories 3 et 4, et à 70 % pour ceux relevant des catégories 2, 5, 6, 7 et 9 ;
– le taux de recyclage et de réutilisation des composants, des matières et des substances est fixé à 75 % au moins en poids moyen par appareil pour les déchets d'équipements électriques et électroniques relevant des catégories 1 et 10 de l'annexe 1 du décret n° 2005-829 susvisé, à 65 % pour ceux relevant des catégories 3 et 4, et à 50 % pour ceux relevant des catégories 2, 5, 6, 7 et 9 ;
– pour les lampes à décharge, le taux de recyclage et de réutilisation des composants, des matières et des substances est fixé à 80 % au moins en poids des lampes.

Art. 4. – Le directeur de la prévention des pollutions et des risques et le directeur général des entreprises sont chargés, chacun en ce qui le concerne, de l'exécution du présent arrêté, qui sera publié au *Journal officiel* de la République française.

Fait à Paris, le 23 novembre 2005.

La ministre de l'écologie
et du développement durable,
Pour la ministre et par délégation :
Le directeur de la prévention des pollutions
et des risques, délégué aux risques majeurs,
T. Trouvé

Le ministre délégué à l'industrie,
Pour le ministre et par délégation :
Le directeur général des entreprises,
L. Rousseau

ANNEXE

EXIGENCES TECHNIQUES AU SENS DE L'ARTICLE 1er DU PRÉSENT ARRÊTÉ

1. Sites d'entreposage de déchets d'équipements électriques et électroniques sur sites de traitement ou station de transit : les aires appropriées sont revêtues de surfaces imperméables munies de dispositifs de collecte des fuites et, le cas échéant, de décanteurs et déshuileurs-dégraisseurs ; si nécessaire, ces aires sont couvertes.

2. Sites de traitement de déchets d'équipements électriques et électroniques :

– l'installation dispose d'un système de pesée des déchets admis ;
– les aires de traitement sont revêtues de surfaces imperméables munies de dispositifs de collecte des fuites et, le cas échéant, de décanteurs et déshuileurs-dégraisseurs. Si nécessaire, ces surfaces sont couvertes ;
– les pièces détachées démontées sont entreposées dans des conditions appropriées ;
– les piles et accumulateurs, les condensateurs contenant du PCB/PCT et autres déchets dangereux, tels que les déchets radioactifs, sont entreposés dans des conditions appropriées ;
– l'installation dispose d'équipements pour le traitement des eaux conformément à la réglementation en vigueur.

Décrets, arrêtés, circulaires

TEXTES GÉNÉRAUX

MINISTÈRE DE L'ÉCOLOGIE ET DU DÉVELOPPEMENT DURABLE

Arrêté du 25 novembre 2005 fixant les cas et conditions dans lesquels l'utilisation dans les équipements électriques et électroniques de plomb, de mercure, de cadmium, de chrome hexavalent, de polybromobiphényles ou de polybromodiphényléthers est autorisée

NOR : *DEVP0540444A*

Le ministre de l'économie, des finances et de l'industrie, la ministre de l'écologie et du développement durable et le ministre délégué à l'industrie,

Vu la directive n° 2002/95/CE du Parlement européen et du Conseil du 27 janvier 2003 modifiée relative à la limitation de l'utilisation de certaines substances dangereuses dans les équipements électriques et électroniques ;

Vu le code de l'environnement, notamment le titre Ier et le chapitre Ier du titre IV de son livre V ;

Vu le code de la consommation, notamment son article L. 214-1 ;

Vu le décret n° 99-374 du 12 mai 1999 relatif à la mise sur le marché des piles et accumulateurs et à leur élimination ;

Vu le décret n° 2005-829 du 20 juillet 2005 relatif à la composition des équipements électriques et électroniques et à l'élimination des déchets issus de ces équipements, notamment son article 4,

Arrêtent :

Art. 1er. – Les matériaux homogènes utilisés dans les équipements électriques et électroniques mis sur le marché à compter du 1er juillet 2006 ne contiennent pas plus de 0,1 % en poids de plomb, de mercure, de chrome hexavalent, de polybromobiphényles (PBB) et de polybromobiphényléthers (PBDE), et pas plus de 0,01 % en poids de cadmium.

Art. 2. – L'utilisation de plomb, de mercure, de cadmium, de chrome hexavalent, de polybromobiphényles ou de polybromodiphényléthers dans les équipements électriques et électroniques mentionnés à l'article 1er du décret du 20 juillet 2005 susvisé est autorisée pour les usages mentionnés à l'annexe du présent arrêté.

Ces substances peuvent en outre être utilisées dans les piles et accumulateurs faisant partie intégrante de l'équipement électrique et électronique dans les conditions prévues par le décret du 12 mai 1999 susvisé.

Art. 3. – Le directeur général de la concurrence, de la consommation et de la répression des fraudes, le directeur de la prévention des pollutions et des risques et le directeur général des entreprises sont chargés, chacun en ce qui le concerne, de l'exécution du présent arrêté, qui sera publié au *Journal officiel* de la République française.

Fait à Paris, le 25 novembre 2005.

La ministre de l'écologie
et du développement durable,
Pour la ministre et par délégation :
Le directeur de la prévention des pollutions
et des risques, délégué aux risques majeurs,
T. Trouvé

Le ministre de l'économie,
des finances et de l'industrie,
Pour le ministre et par délégation :
Le directeur général de la concurrence,
de la consommation
et de la répression des fraudes,
G. Cerutti

Le ministre délégué à l'industrie,
Pour le ministre et par délégation :
Le directeur général des entreprises,
L. Rousseau

ANNEXE

USAGES POUR LESQUELS L'UTILISATION DE PLOMB, DE MERCURE, DE CADMIUM, DE CHROME HEXAVALENT, DE POLYBROMOBIPHÉNYLES ET DE POLYBROMODIPHÉNYLÉTHERS EST AUTORISÉE

1. Le mercure dans les lampes fluorescentes compactes lorsque sa masse ne dépasse pas 5 milligrammes par lampe.

2. Le mercure dans les tubes fluorescents classiques à usage général lorsque sa masse ne dépasse pas :

– pour les tubes halophosphate : 10 milligrammes par lampe ;

– pour les tubes triphosphore à durée de vie normale : 5 milligrammes par lampe ;

– pour les tubes triphosphore à durée de vie longue : 8 milligrammes par lampe.

3. Le mercure dans les tubes fluorescents classiques pour usages spéciaux.

4. Le mercure dans les autres lampes non spécifiées dans la présente annexe.

5. Le plomb dans le verre des tubes cathodiques, des composants électroniques et des tubes fluorescents.

6. Le plomb en tant qu'élément d'alliage avec l'acier lorsque la concentration massique de plomb ne dépasse pas 0,35 %, avec l'aluminium lorsque la concentration massique de plomb ne dépasse pas 0,4 % et dans les alliages de cuivre lorsque la concentration massique de plomb ne dépasse pas 4 %.

7. Le plomb dans les soudures à haute température de fusion (c'est-à-dire dans les alliages de plomb contenant au moins 85 % en poids de plomb).

Le plomb dans les soudures pour les serveurs, les systèmes de stockage et de matrices de stockage.

Les équipements d'infrastructure de réseaux destinés à la communication, la signalisation, la transmission ainsi qu'à la gestion de réseaux dans le domaine des télécommunications.

Le plomb dans les composants électroniques en céramique (par exemple les dispositifs piézo-électriques).

8. Le cadmium et ses composés dans les contacts électriques et pour le cadmiage, sauf pour les applications interdites par le décret n° 94-647 du 27 juillet 1994 relatif à la limitation de la mise sur le marché et de l'emploi du pentachlorophénol, du cadmium et de leurs composés.

9. Le chrome hexavalent comme anticorrosif pour les systèmes de refroidissement en acier au carbone dans les réfrigérateurs à absorption.

10. Le décabromodiphényléther dans les applications polymérisées.

11. Le plomb dans les coussinets et demi-coussinets en plomb/bronze.

12. Le plomb utilisé dans les systèmes à connecteurs à broches conformes.

13. Le plomb en tant que matériau de revêtement pour l'anneau en C du module thermoconducteur.

14. Le plomb et le cadmium dans le verre d'optique et le verre filtrant.

15. Le plomb dans les soudures comportant plus de deux éléments pour la connexion entre les broches et le boîtier de microprocesseurs, à teneur en plomb comprise entre 80 et 85 % en poids.

16. Le plomb dans les soudures visant à réaliser une connexion électrique durable entre la puce et le substrat du semiconducteur dans les boîtiers de circuits intégrés à puce retournée.

B. Caractéristiques enseigne verte Aupem Sefli

VERT FONCÉ N°01

Mélange 75 Néon - 25 Argon vapeur de mercure

Désignation	Ind.	Tol.	Mesure	Unit.
Rendement Lumineux	***	± 2	35	lm/W
Flux linéique		±2.10²	1 280	lm/M
Indice de rendu de couleurs	*	± 3	nc	IRC
luminance propre		± 3.10²	7 342	cd/m²
Pureté	****		47.40	%
Eclairement Shpère Ø 30cm	**	± 10²	12 230	lux
Irradiance			1 636	W/M²
Température de couleur	*	± 70	nc	°K
Observateur 2 degrés				

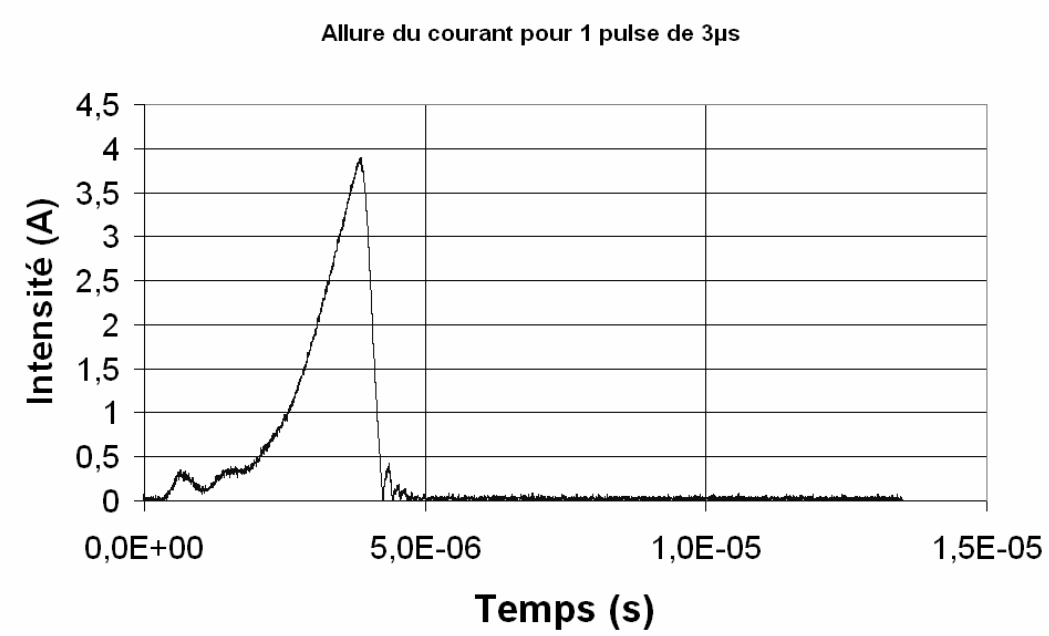
Photo Research - Copyright ©	Resultats	
Dominante :	526.6	nm
C.I.E. Chromacité ±	x	0.2357
	y	0.5641
	u'	0.1014
	v'	0.5460
	Y	0.3640

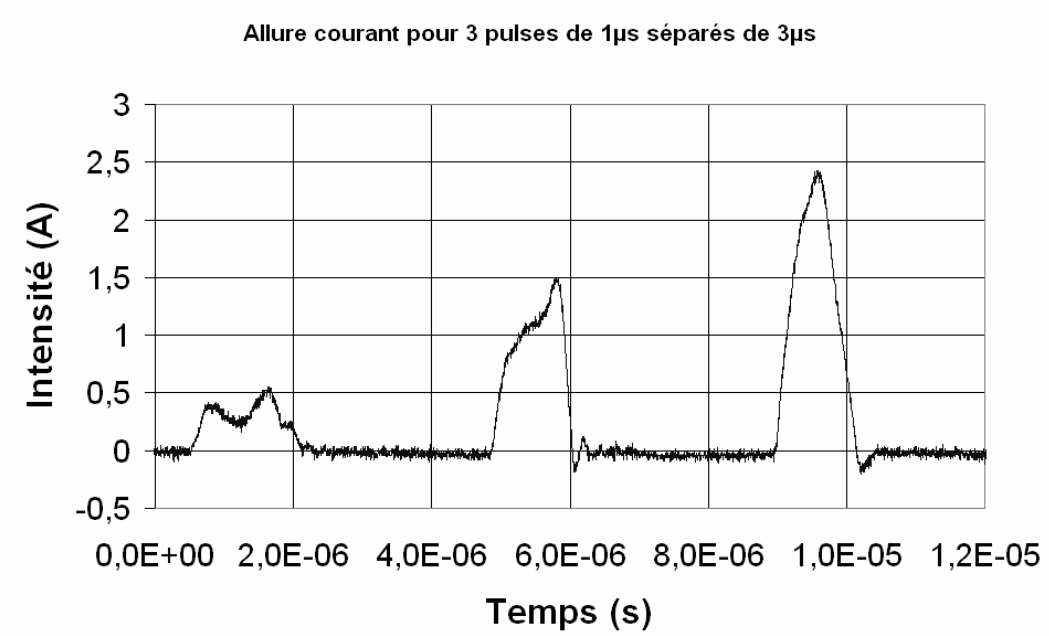
* : Valeurs indiqués pour les tubes situés dans la zone des blancs uniquement.
** : Sous 100 mA (ou 50 mA) suivant indication.
*** : Rendement lampe en condition d'installation optimum
**** : Indiqué pour les tubes colorés seulement

Source: Aupem Sefli

C. Excitation par train d'impulsions

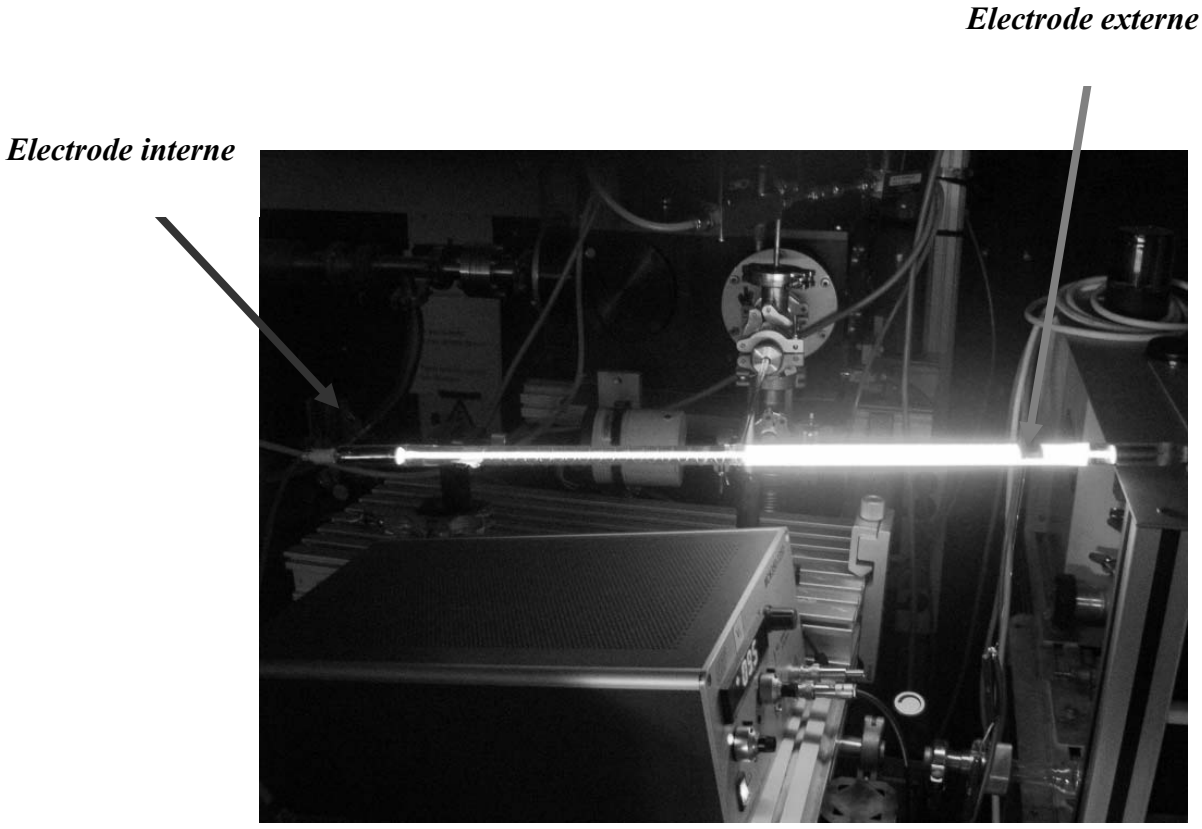
Quelques tests ont été menés pour connaître l'intérêt d'exciter le mélange néon-xénon par un signal pulsé répétant un train d'impulsions plutôt qu'une impulsion seule. Les figures suivantes présentent les deux types de signaux en courant. Il est apparu que l'utilisation de trains d'impulsions diminue significativement la tension nécessaire à l'allumage de la décharge. On suppose que les premières impulsions du train permettent de « pré-ioniser » le milieu, facilitant ainsi la mise en place de la décharge. L'efficacité n'est cependant pas, pour l'instant, améliorée.



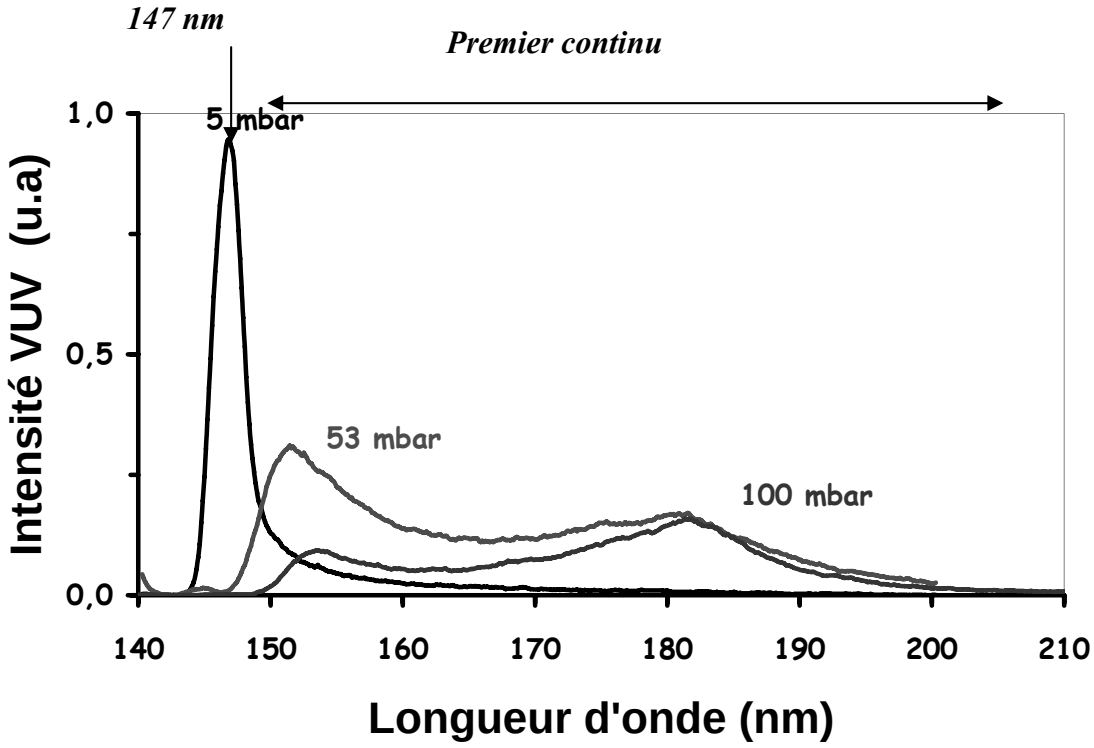


D. Décharge dans le xénon avec électrode externe

L'intérêt d'utiliser de fortes pressions de xénon réside dans la possibilité par ce biais de favoriser la production d'excimères Xe_2^*. Les transitions radiatives entre les états excités de la molécule Xe_2^* et l'état fondamental peuvent donner naissance à un rayonnement dit de continu. Le premier continu (produit par les molécules faiblement liées) s'étend de 150nm à 210 nm de longueur d'onde environ. Le second continu (produit par les molécules plus fortement liées) est quant à lui centré sur 173 nm environ. Ce rayonnement de continu présente l'avantage d'exciter le luminophore sur une large plage de longueurs d'onde et de réduire les pertes Stokes par rapport à 147 nm. Ce type de rayonnement est entre autre obtenu par DBD. Les décharges dans les tubes à cathodes froides à hautes pressions de xénon sont en effet souvent instables et fortement contractées sur l'axe du tube. Ainsi, des expériences ont été menées, dans nos enseignes, en polarisant une électrode interne et une électrode externe constituée d'une bande de cuivre souple enroulées à l'autre extrémité de l'enseigne. La décharge obtenue est alors stable. Le spectre VUV enregistré montre nettement l'émission de premier continu du xénon, et son évolution avec la pression au détriment de la raie atomique à 147 nm.



Enseigne xénon avec une électrode externe en régime pulsé.



Spectre émis par la décharge de xénon pur dans le cas d'une enseigne possédant une électrode externe et une électrode interne.