

Nouvelle technologie de lampe fluorescente à colonne positive hybride, initiée à la cathode par plasma à onde de surface, et émetteurs UV moléculaires S2 et N2/O2 en remplacement du mercure. Caractérisation des performances d'éclairage des prototypes de lampes avec luminophores dédiés

Quentin Gutierrez

▶ To cite this version:

Quentin Gutierrez. Nouvelle technologie de lampe fluorescente à colonne positive hybride, initiée à la cathode par plasma à onde de surface, et émetteurs UV moléculaires S2 et N2/O2 en remplacement du mercure. Caractérisation des performances d'éclairage des prototypes de lampes avec luminophores dédiés. Physique [physics]. Université Grenoble Alpes [2020-..], 2024. Français. NNT : 2024GRALI055. tel-04810330

HAL Id: tel-04810330 https://theses.hal.science/tel-04810330v1

Submitted on 29 Nov 2024

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. THÈSE

Pour obtenir le grade de



DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ GRENOBLE ALPES

École doctorale : I-MEP2 - Ingénierie - Matériaux, Mécanique, Environnement, Energétique, Procédés, Production

Spécialité : MEP - Mécanique des fluides Energétique, Procédés Unité de recherche : Laboratoire de Physique Subatomique et de Cosmologie

Nouvelle technologie de lampe fluorescente à colonne positive hybride, initiée à la cathode par plasma à onde de surface, et émetteurs UV moléculaires S_2 et N_2/O_2 en remplacement du mercure. Caractérisation des performances d'éclairage des prototypes de lampes avec luminophores dédiés

New technology of hybrid positive column fluorescent lamp, initiated by surface wave plasma cathode, and molecular UV emitters S_2 and N_2/O_2 replacing mercury. Characterization of the lighting performance of lamps prototypes with dedicated phosphors

Présentée par :

Quentin GUTIERREZ

Direction de thèse :

Ana LACOSTEDirectrice de thèsePROFESSEURE DES UNIVERSITES, Université Grenoble AlpesDirectrice de thèseLionel SIMONOTCo-directeur de thèseMAITRE DE CONFERENCES HDR, Université de PoitiersCo-directeur de thèse

Rapporteurs :

Tiberiu MINEA PROFESSEUR DES UNIVERSITES, Université Paris-Saclay **Thierry CALLEGARI** MAITRE DE CONFERENCES HDR, Université de Toulouse III - Paul Sabatier

Thèse soutenue publiquement le 9 juillet 2024, devant le jury composé de :

Ana LACOSTE,	Directrice de thèse
Lionel SIMONOT,	Co-directeur de thèse
MAITRE DE CONFERENCES HDR, Université de Poitiers Tiberiu MINEA.	Rapporteur
PROFESSEUR DES UNIVERSITES, Université Paris-Saclay	Rapporteur
Thierry CALLEGARI, MAITRE DE CONFERENCES HDR, Université de Toulouse III - Paul Sabatier	Rapporteur
Géneviève CHADEYRON, PROFESSEURE DES UNIVERSITES, Sigma Clermont Auvergne	Examinatrice
Irina MIHALCESCU, PROFESSEURE DES UNIVERSITES, Université Grenoble Alpes	Présidente

Invité :

Damien Boyer

Maître de Conférence HDR, Université Clermont Auvergne

Lexique

Lexique

HF : Haute Fréquence
DC : Courant Continu (Direct Current)
HF&DC : Configuration de décharge Hybride
UV : Ultra-Violet
IR : Infra-Rouge
IRC : Indice de Rendu des Couleurs
CCT : Température de couleur, Correlated Color Temperature (K)

Dak : Distance inter-électrodes (cm)

- $I:Courant\ (mA)$
- V : tension (V)
- R : résistance (Ω)
- X : réactance (Ω)
- $Z: impédance \left(\Omega \right)$
- P : Puissance (W)
- F : Flux (W ou lm)
- L : Luminance (Wm⁻²sr⁻¹ ou cd m⁻²)
- $r,\eta: rendements~(\%)$

Table des matières

INTRODUCTIC	ON GENERALE
CHAPITRE 1.	Décharges et lampes fluorescentes basse pression
1.1 Lampes F	luorescentes
1.1.1	Historique de l'éclairage moderne
1.1.2	Principe de fonctionnement
1.1.3	Circuits et amorçage
1.1.4	Luminophores
1.2 Plasma en	tretenu par un champ DC
1.2.1	Généralités sur les plasmas
1.2.2	Décharges DC
1.3 Décharge	s Hautes Fréquences
1.3.1	Caractéristiques électriques d'un plasma HF
1.3.2	Caractéristiques d'un plasma HF délimité par des surfaces
1.3.3	Dispositifs de production des décharges à onde de surface
CHAPITRE 2.	Méthodes et techniques expérimentales
2.1 Dispositif	expérimental
2.2 Méthodes	de conception de cathode et de caractérisation HF47
2.2.1	Principe de conception de cathode HF pré-adaptée
2.2.2	Approche numérique pour la conception d'une cathode HF pré-adaptée à une impédance donnée
2.2.3	Dispositif de mesures HF et validations expérimentales
2.2.4	Auto-interférométrie micro-onde : Détermination de la densité électronique le long d'une colonne de plasma HF
2.2.5	Interférométrie micro-ondes : Détermination de la densité électronique dans la région de la colonne positive d'un plasma DC
2.3 Spectrosc	opie d'émission optique
2.3.1	Température d'excitation de l'argon64

2.3.2	Température rotationnelle	56
2.3.3	Température vibrationnelle	59
2.4 Caractéris	ation de lampe	71
2.4.1	Spectroradiomètre	71
2.4.2	Rendements et efficacité lumineuse	71
2.4.3	Estimation du flux lumineux émis	13
CHAPITRE 3.	Etude des décharges en argon7	19
3.1 Décharges	s à cathode HF planaire. Comparaison Décharge DC – Décharge planaire hybrid	le
(HF&DC)	٠	32
3.1.1	Décharge HF à cathode planaire sans adaptateur d'impédance	34
3.1.2 Décha	rge DC - Décharge planaire hybride (HF&DC) sans adaptateur d'impédance différences et similitudes): 36
3.2 Etude des	performances électriques, électromagnétiques et radiométriques d'une décharge	ze
hybride (H	IF&DC) à cathode planaire en configuration dite optimisée9	90
3.2.1	Performances électriques et électromagnétiques9	90
3.2.2	Caractéristiques électriques et radiométriques du plasma) 5
3.3 Retour sur	r le choix des conditions opératoires : Etude paramétrique des décharges HF&D	С
de cathode	e en configuration planaire	99
3.3.1	Dimensionnement des tubes de cathode et de décharge	99
3.3.2	Positionnement du diélectrique par rapport au plan des conducteurs)1
3.3.3	Distance inter-électrodes)4
3.3.4	Influence de la pression)8
3.4 Décharges	HF et HF&DC à cathode de configuration cylindrique11	0
3.4.1	Décharge à cathode non scellée de configuration à onde de surface cylindrique.	 [1
3.4.2	Décharge à cathode scellée de configuration à onde de surface cylindrique11	4
3.4.3	Quelques paramètres électriques d'une décharge à onde de surface cylindrique.	 8
CHAPITRE 4.	Étude des décharges réactives pour la conception de lampe fluorescente 12	23
4.1 Etude des	décharges réactives en mélange N2/O2 12	26

4.1.1	Caractéristiques des décharges Ar-N2/O2	126
4.1.2	Etude électrique et électromagnétique de la décharge hybride (HF&D planaire en mélange Ar-N2/O2	DC) à cathode
4.1.3	Recherche de l'optimum de rendement de production de photons UV	/ + Visible 129
4.2 Etude of	des décharge réactives en mélange Ar-S ₂	140
4.2.1	Etat de l'art des décharges au soufre	140
4.2.2	Caractéristiques d'une décharge Ar-S2 à cathode HF à onde de surfac	e cylindrique 142
4.2.3	Recherche de l'optimum de rendement de production de photons UV	/ + Visible 145
4.3 Concep	ption du prototype de lampe	150
4.3.1	Description des luminophores et méthode de conception pour la déc	harge Ar-S ₂
4.3.2	Couches de luminophores Visible	154
4.3.3	Mélange de luminophores UV et Visible, choix et composition	157
4.3.4	Caractérisation du prototype final de lampe	161
CONCLUSIC	ON GENERALE	169
Annexe 1 : D	éfinition des grandeurs radiométriques, photométriques, et colorimétriqu	es 175
Annexe 2 : Fo	ormalismes S _{ij} et Z _{ij}	179
Annexe 3 : Si	mulations de décharge (COMSOL)	
Annexe 4 On	de de surface (cylindrique). Rappels théoriques	
Annexe 5 Cou	urbes d'absorption et d'émission des Luminophores	
Annexe 6 Lui	ninophores UV	193

Remerciements

REMERCIEMENTS

J'aimerais adresser mes remercîments à l'ensemble des personnes qui m'ont permis d'arriver à l'aboutissement de mon travail de thèse.

Je remercie d'abord Mme. Ana Lacoste, Professeur de l'Université Grenoble Alpes, pour m'avoir offert la chance de réaliser cette thèse sous sa direction. Je remercie également M. Lionel Simonot, Maitre de Conférence de l'Université de Poitiers, pour avoir accepté de co-encadrer mon travail et pour son aide sur les questions relatives à l'éclairage. J'adresse également mes remerciements à M. Arnaud Lucotte, Directeur du LPSC et son successeur Laurent Dérôme pour m'avoir accueilli au sein du laboratoire.

Je souhaite également adresser ma reconnaissance à M. Tiberiu Minea, Professeur de l'Université Paris Sud ainsi qu'à M Thierry Callegari, Maitre de conférences au Laplace, pour avoir accepté de rapporter ma thèse. Mes remerciements vont également aux autres membres de mon jury, Mme Geneviève Chadeyron, Professeur de l'université de Clermont-Ferrand et Mme Irina Mihalescu, Professeur de l'Université Grenoble Alpes pour avoir accepté d'y participer.

Je remercie, bien sûr, l'ensemble des membres du CRPMN pour leur aide dans ce travail de thèse et ailleurs. Tout d'abord, un grand merci à M. Alexandre Bès, Ingénieur de recherche au LPSC, pour son humour, sa positivité et son aide à tous les niveaux et à M. Laurent Bonny, Assistant Ingénieur au LPSC, pour son aide dans l'acquisition des données expérimentales et pour les diverses réalisations techniques. Je remercie également M. Dominique Fombaron, Technicien au LPSC, pour l'usinage des pièces mécaniques, parfois, particulièrement compliquées. Enfin, je remercie Stéphane Béchu, Directeur de recherche au LPSC, pour toutes les conversations, scientifiques et autres, que nous avons partagées.

Mes remerciements vont également aux membres de l'ICCF de Clermont-Ferrand, Damien Boyer, Maitre de conférences à l'ICCF, et Anthony Barros, Maitre de conférences à l'ICCF, avec qui j'ai eu le plaisir de travailler. Je remercie mes amis et collègues doctorants du LPSC, Maria et Zakariae, pour leur gentillesse, leur aide et pour tous les bons moments que nous avons passés ensemble. Je leur souhaite le meilleur pour la suite que ce soit aux niveaux professionnel et personnel.

Je tiens également à exprimer ma reconnaissance aux divers services du LPSC pour leur soutien, M. Christophe Hoarau, Ingénieur de recherche, pour son aide précieuse dans la conception de générateur HF, M. Sebastien Roudier et M. Gilles Raffin du service mécanique pour la conception de pièces mécaniques en tous genres. Je remercie également Mme. Murielle Heush et Mme. Véronique Ghetta, de l'équipe de physique des réacteurs nucléaire pour les divers prêts de matériel en verre. Mes remerciements vont également à l'ensemble du service administratif ainsi qu'à David Maurin, Maitre de conférences au LPSC, pour son suivi extérieur.

Je remercie aussi M Jacques Pelletier, anciennement Directeur de recherche au LPSC, sans qui ma thèse n'aurait pas vu le jour.

Je tiens à remercier mes amis de toujours Romain, Jules et Pablo qui m'ont beaucoup soutenu et qui sont pour moi des « légendes ». Je n'oublie pas Bianca et Leandra ainsi que Stella et mes amis de Grenoble Téo, Maxime et Gabriel avec qui je garde énormément de bons souvenirs. Enfin, je remercie mes parents, Gomar mon « S » et toute ma famille pour leur soutien inconditionnel et tout ce qu'ils ont su m'apporter pour en arriver là. INTRODUCTION GENERALE

Introduction générale

INTRODUCTION GENERALE

De nos jours, les métaux rares comme le chrome, le cobalt, le germanium ou encore le gallium sont devenus, notamment dans les secteurs de l'électronique et du numérique, des éléments essentiels à la fabrication de nombreux produits modernes. L'utilisation des métaux rares dans l'industrie devient un sujet de préoccupation croissant car l'augmentation de la demande mondiale implique une exploitation minière de plus en plus intensive dont les conséquences environnementales sont extrêmement néfastes : déforestation, pollution des sols et des eaux, destruction des écosystèmes. Parallèlement, le coût de ces matériaux augmente en raison des faibles concentrations minières (~ 1%) qui forcent un recours systématique à l'extraction chimique, polluante et fortement consommatrice d'eau et d'énergie.

L'éclairage figure parmi les domaines les plus consommateurs à la fois en termes de métaux rares (20 % de la production mondiale) [1] et d'énergie (7 % de l'électricité mondiale) [2]. L'allègement des lampes en métaux rares, ainsi que la réduction de leur consommation, est donc aujourd'hui un sujet central. Par le passé, les lampes fluorescentes au mercure, largement utilisées dans l'éclairage d'intérieur pendant des décennies, ont même soulevé au travers de leur utilisation massive, des questions de santé publique. En effet, en raison de sa haute toxicité, le mercure a été classé par l'Organisation Mondiale de la Santé (OMS) parmi les 10 éléments chimiques ou groupes de produits chimiques qui posent les plus importants problèmes de santé publique [3]. Pour cette raison, depuis 2023, les tubes fluorescents ont été interdits à la vente [4].

L'avènement des LED (diodes électroluminescentes) a offert, par rapport aux lampes fluorescentes, une meilleure alternative à l'éclairage tant au niveau écologique que de la santé publique. Toutefois, les lampes LED sont fortement dépendantes du gallium qui est un métal rare. Pour Chemistry World, qui a publié un article sur les risques de pénurie de métaux rares en janvier 2011, le gallium figurait déjà parmi les éléments qui faisaient l'objet d'une « sérieuse menace d'ici cent ans » [1]. En 2016, son marché était détenu à hauteur de 69% (71% aujourd'hui) par la Chine et la production mondiale ne s'élevait qu'à 100 tonnes/an. Ceci explique, avec l'explosion des LED (25% de la consommation) et du photovoltaïque (17% de la consommation), un prix qui a été multiplié par plus de 2 depuis ces quatre dernières années et pour en atteindre plus 500 €/kg [5]. Plus récemment, le gallium a fait l'objet d'une restriction des exportations chinoises vers l'union européenne, ce qui fait peser davantage de pression sur les technologies au cœur de la transition énergétique comme notamment les LED [6]. La substitution des lampes fluorescentes par les LED a néanmoins entraîné, depuis 2016, une chute d'environ 10% par an du marché des terres rares (e.g., europium, yttrium et terbium) nécessaires à la production des luminophores. Il en résulte qu'aujourd'hui, le marché de l'europium a pratiquement disparu et que celui de l'yttrium est beaucoup moins tendu, alors que ceux-ci étaient considérés comme critiques il y a 10 ans.

Le recyclage des lampes LED est souvent présenté comme une solution pour atténuer l'impact environnemental de l'utilisation de métaux rares. Cependant, ce type de recyclage n'est pas sans défis car les processus de récupération sont souvent énergivores et nécessitent des technologies complexes. Dans les faits, une grande quantité des déchets contenant des métaux précieux (DEEE) est malheureusement exportée vers des pays en développement. En effet, selon la banque mondiale, celleci représenterait environ 80 % de la production mondiale de DEEE, ce qui aggrave encore plus les problèmes de pollution et de santé publique [7].

Dans cette optique, il est essentiel de repenser nos modes de production et de consommation, en favorisant, dans des domaines comme celui de l'éclairage, des pratiques plus durables et responsables. Face à ces défis complexes, de nombreuses voix plaident en faveur d'une utilisation plus limitée de l'éclairage, mais aussi d'une transition vers une production circulaire et durable, axée sur la réduction de la consommation de ressources. Les *Low Tech* (technologies simples et durables) sont également mises en avant comme des alternatives viables aux technologies hautement énergivores et dépendantes des métaux rares. L'éclairage figure donc parmi les domaines de choix pour lesquels tous ces questionnements prennent une place importante.

L'idée de ce travail de thèse, qui s'inscrit dans le cadre du projet ANR-ADELINE, est de proposer une alternative aux LED et aux tubes fluorescents au mercure, dont les performances seraient équivalentes pour une utilisation de métaux rares (notamment du gallium) fortement réduite. En ce sens, la piste envisagée est celle d'une nouvelle génération de lampes fluorescentes. Les objectifs principaux du projet sont simples mais ambitieux avec, d'une part, la suppression du mercure de la décharge et, d'autre part, une efficacité comparable aux dispositifs d'éclairage actuels (LED). Ce nouveau type de lampe fluorescente reprendrait les avantages des tubes fluorescents, en particulier une lumière diffuse adaptée pour l'éclairage intérieur, sans mercure et donc, sans nécessité d'être neutralisé en fin de vie. En s'affranchissant de l'utilisation d'une cathode chaude, la durée de vie de la lampe serait plus longue que celle des lampes fluorescentes et comparable, voire même, supérieure à celle des LED. Du point de vue économique, cette nouvelle génération de lampe s'appuierait au niveau des matériaux (hors gallium) sur un marché « abondant » de métaux rares (europium, yttrium, terbium) nécessaires à leur conception.

Le travail de recherche conduit lors de ma thèse a été effectué au LPSC (Grenoble) et en collaboration avec deux laboratoires partenaires du projet, l'Institut de Chimie de Clermont- Ferrand (ICCF) et l'Institut Pprime de Poitiers, et ce manuscrit qui le décrit est organisé en 4 chapitres.

Le **Chapitre 1** introduit le concept de lampe fluorescente ainsi que les différentes décharges considérées dans ce travail de thèse.

Introduction générale

La première section de ce chapitre est dédiée à la description du principe de fonctionnement des lampes fluorescentes en se limitant aux tubes de lampe traditionnels. Cette description est donnée à la fois au niveau de la décharge émettrice de photons UV et au niveau de la conversion UV – Visible, accomplie par des espèces fluorescentes. Elle introduit également les principales grandeurs, *e.g.*, rendement de production de photons, flux rayonné, rendement de conversion, efficacité lumineuse, grandeurs qui caractérisent à différents niveaux les lampes et qui sont maniées dans le travail effectué dans cette thèse. Les deux autres sections s'appuient sur des rappels théoriques pour introduire les décharges à Courant Continu (DC) et Haute Fréquence (HF). Les décharges DC visent en particulier le régime de décharge luminescente et ses composantes structurelles (lueur négative, espace sombre de faraday, colonne positive) décrites de manière phénoménologique, tandis que les décharges HF sont abordées du point de vue du comportement d'une onde électromagnétique (propagation, absorption) dans des systèmes où l'un des milieux est constitué d'un plasma. Cela amène au mécanisme d'entretien des décharges HF à onde de surface et aux dispositifs de production utilisés dans le cadre de ce travail. La terminologie employée pour ces dispositifs à structure coaxiale est celle de cathode HF.

Le Chapitre 2 regroupe l'ensemble des méthodes et techniques expérimentales.

Après la description complète du dispositif expérimental (section 2.1), ce chapitre présente les méthodes et techniques de caractérisation utilisées pour l'optimisation des performances de la lampe, que ce soit au niveau de la décharge ou de la fluorescence. L'une des sections (2.2) est consacrée à la conception de cathodes HF préadaptées, *i.e.*, cathodes d'efficacité en transmission de puissance HF du générateur à la décharge proche de 100%. Elle décrit donc les approches employées pour la conception de ces cathodes : l'approche numérique d'optimisation des cathodes par la simulation HF à 1 port ou à 2 ports et l'approche expérimentale permettant, d'une part, la détermination de l'impédance dans le plan d'interface cathode/décharge (approche complémentaire requise dans le modèle à 2 ports) et, d'autre part, à la validation du modèle à 1 port. Cette section présente également les deux méthodes basées sur l'interférométrie des ondes HF et utilisées pour la détermination de la densité d'un plasma HF ou d'un plasma de colonne positive.

Une autre section (2.3) présente les méthodes qui font appel à la spectroscopie optique d'émission (SOE) de la décharge. La procédure de la détermination de différentes températures (excitation, rotationnelle, vibrationnelle) à partir des spectres d'émission et en supposant l'équilibre de Boltzmann est présentée pour chacune de ces températures. Les valeurs obtenues sont interprétées au regard des températures utiles pour la description de nos décharges comme la température électronique et la température du gaz. Enfin, une dernière section (2.4), présente l'ensemble des méthodes de caractérisation photométrique d'une lampe. Après l'introduction de la radio-photométrie et des grandeurs associées, deux méthodes de caractérisation du flux lumineux total émis par une lampe sont présentées.

Le Chapitre 3 est consacré à la caractérisation expérimentale des décharges en argon et à l'optimisation de leurs performances.

En vue de la préparation d'un prototype de lampe fluorescente à gaz réactif, les décharges obtenues avec différentes cathodes HF ont été investiguées en utilisant un gaz précurseur inerte (argon) pour faciliter le travail d'optimisation des performances énergétiques. Pour cela, deux configurations génériques de cathode HF sont utilisées : configuration planaire (cathode planaire) et à onde de surface cylindrique (en abrégé cathode cylindrique).

La première section (3.1) exploite et compare deux décharges obtenues, dans un même dispositif muni d'une cathode planaire, par alimentation DC et HF&DC. Cette comparaison est essentiellement réalisée sur la base de leur caractéristique I-V et du potentiel le long de la décharge, et elle démontre les avantages apportés par la substitution de la cathode DC par une cathode HF en termes de gain en puissance consommée, de simplification du circuit électrique (suppression du ballast requis dans une décharge DC), mais aussi en termes d'application à l'éclairage (cathode froide, pas de pulvérisation de cathode).

Une deuxième section (3.2) est réservée à l'étude, aussi exhaustive que possible, de la décharge à cathode planaire en mode hybride (HF&DC), dans un circuit simplifié (*i.e.*, sans ballast, sans adaptateur d'impédance), pour en extraire les performances électriques, électromagnétiques et radiométriques de la décharge. Cette étude a permis d'examiner l'influence de la tension DC sur les propriétés électromagnétiques de la cathode HF (transmission, couplage) et d'établir une limite haute pour la tension DC qui maximise le courant de décharge et, par voie de conséquence, le flux énergétique en émission de photons.

L'étude présentée dans les sections 3.1 et 3.2 a été conduite pour une cathode préalablement optimisée et, donc, pour une configuration de cathode et une distance inter-électrodes données. Ce choix ainsi que la pression du gaz, sont justifiés dans une section à part (3.3), réservée à une étude paramétrique et à la comparaison du rendement énergétique obtenu pour différents paramètres qui convergent vers la cathode dite optimisée.

Une dernière section (3.4) concerne la cathode HF à onde de surface cylindrique pour une géométrie révisée par rapport à celle de configuration planaire. Les arguments du choix des dimensions et de la conception cathode/tube de décharge amènent à deux types de configurations : décharges à tube non-scellé et à tube scellé. Les performances de ces décharges, en mode HF et HF&DC, sont à nouveau examinées au travers de la luminance et du rendement énergétique, et ensuite comparées aux valeurs obtenues avec la cathode de configuration planaire.

Le **Chapitre 4** réunit l'ensemble des caractérisations réalisées sur des décharges en mélanges réactifs, associées à des films chargés en luminophores, en vue de l'élaboration d'un prototype de lampe fluorescente.

Les différentes études présentées dans ce chapitre visent la maximisation de l'émission UV + Visible de la décharge, ainsi que l'optimisation de la conversion UV-Visible des films fluorescents chargés en luminophores.

La première section (4.1) porte sur l'étude des décharges utilisant un mélange $Ar-N_2/O_2$, et ce, pour les deux types de cathode (optimisée en transmission), planaire (mode hybride) et cylindrique (mode HF). Le comportement en termes d'émission optique avec la variation de la concentration du mélange moléculaire est étudié et analysé en parallèle avec la densité électronique et les températures expérimentalement déterminées.

La deuxième section (4.2), concerne la décharge de mélange $Ar-S_2$ obtenue avec une configuration de cathode à onde de surface cylindrique, en tube scellé. Le soufre est un émetteur qui présente une répartition spectrale appropriée à l'élaboration d'une lampe fluorescente du fait de la proximité du spectre UV avec le domaine du Visible. Les spécificités liées à l'utilisation du soufre (solide à température ambiante) dans la décharge sont discutées et la méthode employée pour le contrôle de la pression de vapeur de soufre est présentée. L'étude de l'influence de la composition du mélange $Ar-S_2$ vise à déterminer la composition qui optimise le rendement de production des photons UV + Visible par la décharge.

Enfin, la dernière section de ce chapitre (4.3) présente les performances énergétiques et photométriques de la décharge Ar-S₂ associée à des films fluorescents chargés en luminophores. Cette partie du travail a été réalisée en collaboration avec l'un des partenaires du projet, ICCF (Clermont Ferrand), pour la conception des films, l'analyse et l'interprétation des résultats. Les deux stratégies de composition et de mise en forme des films, envisagées pour la conversion UV-Visible (de l'émission de la décharge Ar-S₂) sont présentées et les résultats obtenus discutés. Le choix des luminophores et leurs proportions dans les films fluorescents ont amené à l'élaboration d'un prototype final pour lequel une description détaillée est donnée. L'ensemble des performances (énergétiques et visuelles) du prototype final est donc récapitulé et son utilisation pour des applications à l'éclairage est discutée.

La conclusion générale et les perspectives sont présentées dans un chapitre qui clôture ce manuscrit de thèse.

CHAPITRE 1. Décharges et lampes fluorescentes basse pression

Introduction du Chapitre 1

Ce chapitre regroupe un ensemble des définitions et notions relatives au fonctionnement des lampes fluorescentes et décharges considérées dans ce travail de thèse.

Le principe général de fonctionnement des lampes fluorescente au mercure (Hg) ainsi que leurs performances et limites sont présentés dans la première section 1.1 de ce chapitre. Celle-ci est complétée avec une description technique qui concerne principalement les éléments de circuit nécessaires à l'amorçage et à l'entretien de la décharge Ar-Hg. L'une des particularités des lampes fluorescentes réside dans la conversion UV-Visible par différentes espèces fluorescentes, dont le principe de base et les propriétés optiques associées à ces espèces sont rappelés.

Après quelques généralités sur les plasmas et, plus particulièrement, sur les plasmas froids, la deuxième section 1.2 vise à introduire les décharges à courant continu (DC) et à décrire brièvement les régimes de fonctionnement par l'intermédiaire de leur caractéristique I-V. Cette section présente également une description phénoménologique du régime particulier de décharge luminescente exploitée dans le cadre de cette thèse.

La dernière section 1.3, concerne les décharges entretenues par un champ haute fréquence (HF) et elles sont abordées du point de vue du comportement d'une onde électromagnétique dans un environnement tel que le plasma, supposé dans un premier temps infini et homogène, puis délimité par des parois physiques (diélectriques et métalliques). L'objectif est d'introduire la notion de décharge à onde de surface et de présenter les différentes structures coaxiales utilisées dans le cadre de cette thèse pour la production de ce type de décharge. Le concept de cathode HF est également introduit afin d'insister sur le fait que ces structures coaxiales peuvent être simultanément polarisées par l'application d'une composante DC à la décharge pour en obtenir ce que nous appellerons par la suite les décharges hybrides (HF&DC).

1.1 Lampes Fluorescentes

1.1.1 Historique de l'éclairage moderne

Après la découverte de l'électricité, il faut attendre 1879 pour qu'apparaisse la lampe à incandescence mise au point par Thomas Edison. Cette lampe, à la différence des lampes à huile ou à pétrole utilisées à cette époque émet de la lumière non pas par une flamme mais par l'incandescence d'un corps solide (rayonnement de corps noir). Le principe de la lampe à incandescence consiste à faire parcourir un courant électrique dans un filament métallique permettant d'augmenter fortement sa température et ainsi d'émettre de la lumière. Le concept de lampe à incandescence établi par Thomas Edison a ensuite connu des perfectionnements qui ont conduit à l'élaboration, en 1959, de la lampe halogène. La lampe halogène est une lampe à incandescence dans laquelle le filament métallique en tungstène est placé dans une ampoule en quartz renfermant des gaz halogénés à haute pression comme l'iode ou le brome. Les atomes de tungstène libérés du filament par sublimation sont captés par le gaz halogène évitant le dépôt du tungstène sur la paroi intérieure de l'ampoule. Les halogénures de tungstène ainsi formés migrent naturellement vers le filament et se dissocient, permettant aux atomes de tungstène d'intégrer de nouveau le filament et aux halogènes d'être disponibles pour le cycle suivant. Ce procédé prolonge la durée de vie du filament et donc de la lampe en ralentissant sa dégradation. Toutefois, leur efficacité lumineuse (voir définition section 2.4.2) est faible (20 lm.W⁻¹) et leur durée de vie, bien qu'augmentée par la présence de gaz halogène, reste limitée. En effet la durée de vie d'une lampe halogène n'est que de 2000 heures ce qui est peu comparé, par exemple, aux performances des lampes fluorescentes.



Figure 1.1 Historique de l'éclairage électrique.

On peut attribuer l'invention de la lampe fluorescente à Edmond Becquerel, qui, dans la seconde moitié du XIXe siècle, étudie le phénomène de fluorescence et propose son utilisation dans une lampe à décharge dite « d'air raréfié » (basse pression) en déposant à l'intérieur du tube des substances fluorescentes. L'émission UV caractéristique du diazote (voir figure 4.1) excite les substances

fluorescentes qui émettent à leur tour une lumière de moindre énergie que la lumière absorbée, mais cette perte énergétique est intéressante puisqu'elle permet la conversion de l'émission UV de la décharge en lumière visible (voir section 1.1.4). Pour arriver aux lampes fluorescentes modernes, il aura fallu maitriser la décharge dans un gaz émettant suffisamment de rayonnement UV et trouver des substances offrant des rendements de conversion UV-Visible élevés qui produisent dans le même temps une lumière blanche de qualité suffisante. Les lampes fluorescentes ont été commercialisées depuis les années 1930 et ont fait depuis l'objet d'un travail considérable d'optimisation jusque dans les années 2000 avec notamment l'apparition en 1976 des lampes fluocompactes (CFL) plus adaptées à l'usage domestique. Les avantages que les tubes fluorescents confèrent par rapport à une lampe à incandescence sont premièrement une durée de vie supérieure (15 000 h contre 2000 h), et deuxièmement une efficacité lumineuse 5 à 7 fois plus élevée (environ 100 lm.W⁻¹). La conversion UV-Visible des luminophores permet également un contrôle précis des propriétés visuelles de ces lampes, et offre une large gamme de températures de couleur (voir définition en annexe 1) possibles pour la lumière blanche.

De nos jours, ce sont les LED (Diode ElectroLuminescente) qui dominent le marché de l'éclairage grâce à leurs performances élevées en termes d'efficacité lumineuse et de durée de vie.

1.1.2 Principe de fonctionnement

Les lampes fluorescentes sont des lampes à décharge basse pression qui sont basées sur l'émission UV d'un plasma de mélange argon /mercure (Ar/Hg). La lumière visible émise par la lampe est rayonnée par la poudre de luminophores (voir 1.1.4) qui tapisse les parois de la lampe. Ces luminophores convertissent par fluorescence les photons UV émis par les atomes de mercure en photons visibles, comme schématisé sur la figure 1.2.



Figure 1.2 Schéma de principe d'une lampe fluorescente traditionnelle.

Les décharges à base de mélange Ar/Hg utilisées dans les tubes fluorescents de basse fréquence (50-60 Hz) sont entretenues entre deux électrodes amenées à haute température (voir section 1.2.2). Une partie

de la puissance électrique consommée par la lampe est donc dépensée pour le chauffage des électrodes. A titre d'exemple (figure 1.3), pour un tube fluorescent standard T8 (Ø28 mm), 15% de la puissance totale sont consommés pour maintenir les électrodes à une température proche de 1000 °C [8]. Malgré cette consommation, le chauffage des électrodes permet de produire de forts courants de décharge et, de ce fait, d'obtenir un rendement de production de photons, proche de 60% (23,7 W de la puissance totale de 36 W dans l'exemple de la figure 1.3).



Figure 1.3 Bilan énergétique d'une lampe fluorescente [9].

Les vapeurs de mercure formées dans la décharge constituent le gaz émetteur et maintiennent par la température du point le plus froid de la lampe (~40 °C) une pression de vapeur saturante de quelques mTorr [10]. L'efficacité du mercure comme gaz émetteur s'explique par la présence de la raie de résonance à 254 nm dont l'émission représente 95% de l'émission totale de la décharge (22,5 W du flux rayonné de 23,7 W dans l'exemple de la figure 1.3). L'excitation de cette raie nécessite peu d'énergie et la production d'électrons en volume est permise par des circuits de réactions de faible énergie (~4,9 eV) [11,12]. Une pression partielle d'argon d'environ 1 Torr est ajoutée dans le but de limiter les pertes des espèces du corps de la décharge (et de leur énergie) par le processus de diffusion [13,14] vers les parois qui l'entourent.

Comme le montre la figure 1.3, les luminophores utilisés pour la conversion UV constituent une perte d'énergie car seulement 36 % de la puissance de ce rayonnement sont convertis en lumière visible (qui résultent de 8,1 W convertis en visible sur les 22,5 W de rayonnement UV, selon l'exemple de la figure 1.3). Malgré le faible rendement de conversion des luminophores, l'efficacité lumineuse des lampes fluorescentes reste élevée en raison du rendement élevé de production de photons UV, et d'une émission de fluorescence bien centrée sur le visible. Dans l'exemple de la figure 1.3, 3400 lm sont émis pour une puissance électrique fournie de 36 W, soit une efficacité lumineuse de 94 lm/W.

La durée de vie des lampes fluorescentes est limitée essentiellement par leurs électrodes qui, par leur fonctionnement à haute température, finissent nécessairement par devenir inutilisables après 10 000 à 15 000 heures de fonctionnement. Le vieillissement des lampes fluorescentes est principalement dû à l'interaction du mercure avec les impuretés présentes dans la décharge, les luminophores et les parois de la lampe. Proche de sa fin de vie, une lampe fluorescente perd en moyenne la moitié de son efficacité lumineuse. Les lampes fluorescentes à induction (commercialisées par Phillips en 1991) possèdent des durées de vie encore plus élevées qui sont de l'ordre de 60 000 heures. Ces longues durées de vie sont expliquées par l'utilisation d'une excitation HF qui affranchit la décharge de contact avec des électrodes [15,16].



Figure 1.4 Schéma de principe d'une lampe à induction.

Ces lampes sont constituées d'un culot muni d'une bobine reliée à une alimentation HF (Phillips, 2,56 MHz) qui permet de générer un champ magnétique alternatif dans l'ampoule, elle-même composée d'un verre conducteur. Le champ magnétique induit un courant électrique dans le mélange argon mercure (figure 1.4) et les électrons ainsi formés excitent les atomes de mercure qui émettent à leur tour un rayonnement UV. Comme pour les tubes fluorescents, le rayonnement UV émis est ensuite converti en lumière visible par une couche de luminophores. Les longues durées de vie proposées par les lampes fluorescentes à induction n'ont malheureusement pas compensé leur prix élevé. Toutefois, l'absence d'électrodes laisse envisager d'autres émetteurs UV notamment réactifs comme le soufre (S₂) [17], moins polluants et moins chers que le mercure. En présence d'une cathode chaude, un tel gaz réagirait chimiquement avec le métal qui compose l'électrode ce qui explique, entre autres, pourquoi les tubes fluorescents standards sont limités au mercure pour l'émission UV.

1.1.3 Circuits et amorçage

Pour permettre l'allumage d'un tube fluorescent et donc de la décharge, une surtension suffisante doit être appliquée au gaz de sorte à initier l'avalanche électronique. En fonctionnement, le courant doit également être stabilisé pour atteindre, sans le dépasser, le courant de fonctionnement de la lampe. Tout ceci nécessite l'utilisation combinée d'un starter pour l'allumage et d'un ballast pour la stabilisation du courant. L'alimentation électrique est représentée sur la figure 1.5 dans le cas d'un ballast ferromagnétique (inductance). Au moment de l'allumage de la lampe, le courant électrique du réseau parcourt le circuit schématiquement représenté figure 1.5. La tension du réseau génère une décharge dans le starter, petite lampe à décharge dans l'argon dont les électrodes forment un bilame. Lorsque la décharge s'amorce dans le starter, les deux éléments du bilame rentrent en contact. Une fois en contact, le circuit se ferme ce qui permet le chauffage des électrodes du tube. Lorsque le bilame refroidit suffisamment jusqu'à ce qu'il n'y ait plus de contact, le circuit s'ouvre, ce qui induit une surintensité qui se traduit par une surtension aux bornes de l'inductance du ballast ferromagnétique et, par conséquent, aux bornes du tube de décharge. Si les électrodes sont suffisamment chaudes, la décharge s'amorce, autrement le cycle se répète. Une fois la décharge amorcée, l'inductance stabilise le courant de décharge préservant ainsi les électrodes de la surchauffe.



Figure 1.5 Schéma du circuit électrique d'une lampe fluorescente dans le cas de l'utilisation d'un ballast ferromagnétique.

Interdits à la vente depuis 2011, les ballasts ferromagnétiques ont été remplacés par des ballasts électroniques. Il s'agit d'alimentations à haute fréquence (50 - 60 kHz) qui consomment sensiblement moins de puissance que leur équivalent ferromagnétique et permettent une gradation de la lumière émise.

1.1.4 Luminophores

Les tubes de lampe en borosilicate utilisés pour la conception des tubes fluorescents ont une transmission qui chute dans les UV, ce qui les rendent opaques aux longueurs d'onde inférieures à 300 nm. Pour cette raison, la conversion en lumière visible doit avoir lieu avant que la lumière ne traverse la paroi du tube. Les luminophores sont donc déposés sur la face intérieure sous forme de poudre dont le diamètre des grains est de l'ordre de quelques micromètres.

Les luminophores sont des matériaux constitués d'une matrice hôte cristalline dans laquelle on introduit volontairement des ions activateurs appelés dopants qui vont lui conférer des propriétés de luminescence. Les dopants sont le plus souvent des ions lanthanides trivalents ou divalents (Eu^{2+} , Eu^{3+} , Tb^{3+} , $Ce^{3+}...$) qui, introduits en faibles quantités (quelques %), se substituent aux ions de la matrice hôte (solution solide de substitution) générant ainsi des niveaux d'énergie intermédiaires entre la bande de valence et la bande de conduction de la matrice hôte. Ceux-ci conférent au matériau des propriété optiques qui sont spécifiques à la matrice hôte ainsi qu'à la terre rare utilisée (ion dopant). La figure 1.6 montre une structure simplifiée des niveaux d'énergie d'un ion dopant dans une matrice hôte. Le niveau (0) correspond au niveau fondamental et les niveaux (1) et (2) correspondent aux niveaux excités du centre émetteur.



Figure 1.6 Exemple simplifié des niveaux d'énergie d'un ion dopant au sein d'une matrice hôte [18].

Lorsqu'un luminophore est exposé à un rayonnement, UV par exemple, les électrons de la bande de valence gagnent en énergie pour peupler les niveaux de hautes énergies de l'ion dopant (2), ceux-ci se désexcitent par relaxation vibrationnelle (non radiative) vers des niveaux de plus faibles énergies (1) qui se désexcitent à leur tour (en partie) par l'émission d'un photon du niveau excité (1) vers le niveau fondamental (0). On appelle déplacement ou décalage de Stokes la différence d'énergie entre le niveau excité « d'absorption » et le niveau excité « d'émission ». Cette énergie correspondante est perdue sous forme de chaleur dans le luminophore (figure 1.3).

On caractérise optiquement un luminophore par ses propriétés spectrales d'absorption/excitation et d'émission, ainsi que par ses propriétés de conversion. Le rendement quantique interne traduit l'efficacité propre du luminophore à convertir le rayonnement absorbé, dans notre cas, en lumière visible. Dans les tubes fluorescents, le revêtement que l'on nomme luminophore par abus de langage est en fait un mélange de trois luminophores émettant dans le rouge (R), le vert (V) et le bleu (B). Le mélange (RVB) des trois luminophores dans des proportions judicieusement déterminées permettent, à partir de l'émission UV du mercure, d'obtenir une lumière blanche dont les propriétés photométriques et colorimétriques peuvent être choisies. Un exemple de mélange RVB utilisé dans les tubes fluorescents est le suivant : une matrice Y₂O₂S dopé Eu³⁺ comme luminophore associé à l'émission rouge, une matrice CeMgAl₁₁O₁₉ dopé Tb³⁺ comme luminophore associé à l'émission verte et enfin une matrice BaMgAl₁₀O₁₇ dopé Eu²⁺ (communément appelé BAM) comme luminophore associé à l'émission bleue. Les courbes de la figure 1.7 présentent en noir les spectres d'excitation et en couleur les spectres d'émission (pour une excitation à 300 nm) associés aux trois luminophores donnés ci-dessous en exemple.



Figure 1.7 Spectre d'émission (excitation à 300 nm) et d'absorption du luminophore : a) bleu $(BaMgAl_{10}O_{17} dopé Eu^{2+})$; b) vert (CeMgAl_{11}O_{19} dopé Tb³⁺); c) rouge (Y₂O₂S dopé Eu³⁺).

On peut remarquer tout d'abord que les spectres d'émission associés à ces trois luminophores sont bien centrés sur les longueurs d'onde qui correspondent à leurs couleurs respectives, bleue (450 nm) pour le BAM, vert (545 nm) pour le CeMgAl₁₁O₁₉ et rouge (626 nm) pour le Y₂O₂S. Les courbes noires de la figure 1.7 montrent que la zone d'excitation de ces deux luminophores n'est pas maximale à la longueur d'onde d'excitation de la raie résonnante du mercure (254 nm) car seulement 40 à 60 % du rayonnement UV est converti. Le rendement interne, pour une excitation à 254 nm, du BAM et du Y₂O₂S sont respectivement de 48 et 52 % ce qui explique avec leur absorption pourquoi le rendement de conversion absolu des luminophores utilisés dans les tubes fluorescents est réduit (figure 1.3). Dans les faits, l'épaisseur optique de la couche de luminophore influence elle aussi la conversion mais cet effet n'est pas décrit dans cette section.

La répartition des luminophores dans le mélange RVB, ainsi que le choix de la matrice cristalline et de l'ion activateur, constituent des paramètres que l'on peut moduler pour générer une émission visible ayant des propriétés photométriques et colorimétriques désirées.

1.2 Plasma entretenu par un champ DC

1.2.1 Généralités sur les plasmas

Les plasmas se distinguent des gaz essentiellement par la nature de l'interaction entre les particules qui les composent. Dans un gaz constitué uniquement de particules neutres (atomes, molécules), l'interaction est à courte portée (de type Van Der Waals) alors que dans un plasma, constitué de charges (électron, ions), l'interaction est à longue portée (de type coulombien). Ce type d'interaction confère un comportement collectif qui permet, par l'effet d'écran, d'assurer la neutralité électrique du plasma à l'échelle macroscopique. Celle-ci se traduit par l'égalité entre le nombre de charges négatives et celui de charges positives présentes ou, dans le cas d'un plasma constitué d'ions une fois chargés et exempte d'ions négatifs, par l'égalité entre les densités d'ions positifs n_i et d'électrons n_e . La notion de plasma est aussi utilisée pour les milieux composés à la fois de neutres et d'espèces chargées, à condition que la neutralité électrique à l'échelle macroscopique soit respectée. Le degré d'ionisation d'un tel milieu est défini par :

$$\alpha_i = \frac{n_i}{n_i + N} \tag{1.1}$$

où N est la densité d'espèces neutres.

Selon le degré d'ionisation, on peut classifier les plasmas en deux grandes catégories : les plasmas chauds dans lesquels tous les neutres sont ionisés, $\alpha_i = 1$, et la condition d'équilibre thermique est obtenue (*i.e.* égalité des températures ionique et électronique, $T_i = T_e$) ; les plasmas froids de degré d'ionisation inférieur à 1, du fait de la présence de neutres. Dans les plasmas froids de laboratoire (décharges électriques), ceux-ci sont majoritaires, $\alpha_i < 10^{-3}$, et le système est hors équilibre thermodynamique ($T_i \approx T_N \ll T_e$, où T_N représente la température des neutres), excepté les plasmas dits thermiques (torches, arcs) pour lesquels toutes les espèces sont en équilibre mais à une température très inférieure (jusqu'à quatre ordres de grandeur) à celle des plasmas chauds.

Les plasmas froids ont de nombreuses applications, comme le traitement de surface [19], la propulsion spatiale [20], l'éclairage (*e.g.*, lampes fluorescentes), etc.

La méthode la plus courante pour générer un plasma est l'application d'une différence de potentiel entre deux électrodes. Le champ électrique ainsi créé permet d'initier et d'entretenir la décharge par le biais des collisions électron-neutres. En effet, sous l'effet du champ électrique, les électrons primaires présents dans le gaz (produits par rayonnement cosmique, radioactivité naturelle, ...) sont accélérés et entrent en collisions élastiques et inélastiques avec les neutres. Les collisions ionisantes conduisent à une augmentation exponentielle en électrons jusqu'à l'obtention d'une avalanche qui fait passer le gaz dans un état conducteur. Cette transition définit le claquage, ou amorçage, de la décharge. La différence de potentiel nécessaire pour amorcer la décharge est fonction de la nature du gaz, de la pression p du gaz et de la distance d entre les électrodes. Les courbes de claquage représentent, pour un gaz donné, la tension d'amorçage en fonction du produit (p.d) et sont connues sous le nom de courbes de Paschen ou de courbes de similitude. La figure 1.8 présente des exemples de courbes de Paschen pour différents gaz [21].



Figure 1.8 Courbes de similitude ou courbes de Paschen, pour différents gaz [21].

Ces courbes montrent que, quelle que soit la nature du gaz, il y a une valeur $(p.d)_{min}$ pour laquelle la différence de potentiel de claquage requise est minimale (minimum de Paschen). De part et d'autre de ce minimum, le champ requis au claquage est plus grand, ce qui peut être expliqué de manière simple [22] en considérant les relations entre le libre parcours moyen de collisions, *l*, et la pression ou la densité de neutres, $l \sim 1/p \sim 1/N$, et celle entre le champ électrique et la distance inter-électrodes, $E \sim 1/d$. Lorsque $(p.d) > (p.d)_{min}$, *i.e.*, libre parcours moyen des électrons très petit et/ou distance inter-électrodes très grande, l'énergie moyenne gagnée par les électrons entre deux collisions consécutives avec les neutres devient inférieure au seuil d'énergie d'ionisation du gaz. Dans ce cas, pour atteindre le claquage, un champ électrique plus fort et, donc, une tension appliquée plus élevée sont nécessaires. A l'opposé, lorsque $(p.d) < (p.d)_{min}$, le nombre moyen de collisions électron-neutre est très faible et la probabilité d'effectuer des collisions ionisantes entre les deux électrodes est fortement réduite. De ce fait, la tension nécessaire au claquage est plus élevée.

Par suite des mécanismes propres au plasma (*e.g.*, formation de charges d'espace), l'amorçage est accompagné d'une reconfiguration du champ électrique et, donc, du potentiel au sein de la décharge (*cf.* section suivante, 1.2.2). Les tensions d'entretien de la décharge sont alors plus faibles que celles nécessaires au claquage, mais l'allure des courbes demeure similaire. Il est également important de noter que le claquage et l'entretien des décharges sans électrodes (*i.e.*, décharges entretenues par champ haute fréquence, HF) sont décrits par des courbes de même allure [23,24,25], la distance inter-électrodes étant remplacée par une longueur caractéristique de diffusion reliée aux dimensions (rayon, longueur) de la décharge [13].

Ces courbes de similitude, V(p.d), sont importantes pour des applications comme, par exemple, les lampes fluorescentes où le minimum de consommation d'énergie est recherché. Pour un gaz donné, il est donc préférable de choisir des conditions opératoires (pression et géométrie) appropriées afin de se positionner à une valeur *p.d* au plus près des minima de claquage et d'entretien.

Dans les exemples montrés sur la figure 1.8, on peut aussi observer que le minimum de claquage est obtenu pour l'argon. Cela est dû à la fois à son seuil d'ionisation (15,76 eV, plus faible par rapport à d'autres gaz comme, par exemple, 21,56 eV pour le néon et 24,59 eV pour l'hélium) et à sa nature atomique (dans les gaz moléculaires, une part de l'énergie des électrons est dépensée pour leur dissociation [26]). Du point de vue du seuil d'ionisation, le xénon et le krypton sont aussi des bons candidats (12,13 eV pour le Xe et 13,99 eV pour le krypton), mais leur coût est élevé pour une utilisation en quantité. L'argon est donc couramment utilisé, en tant que tel, comme gaz de référence dans des études d'évaluation comparative de différentes technologies de production du plasma, mais aussi comme gaz porteur dans des décharges de mélange où, selon l'application visée, l'introduction d'un gaz moléculaire est nécessaire pour la production d'espèces réactives.

La section 1.2.2 et la section 1.3, rappellent brièvement les principales caractéristiques de différents types de décharges et, en particulier, celles étudiées durant cette thèse, à savoir : décharges luminescentes entretenues par un champ DC et/ou HF.

1.2.2 Décharges DC

Caractéristiques I-V. Les régimes de fonctionnement d'une décharge DC, alimentée par un champ continu appliqué entre deux électrodes, sont représentés par la caractéristique I-V montrée sur la figure 1.9 pour une décharge basse pression. Cette courbe, décrite en détail et dans son intégralité dans de nombreux ouvrages et articles [27,28,29], comporte trois principaux régimes connus sous le nom de décharge Townsend (Townsend discharge), de décharge luminescente et d'arc électrique (Arc). La première, de courants inférieurs à 10⁻⁶ A, est sombre et ne présente aucun intérêt du point de vue de l'éclairage. Comme le nom l'indique, la décharge luminescente (Normal glow) de courants plus importants (10⁻⁴ à 10⁻¹ A) est plus lumineuse, raison pour laquelle elle est utilisée dans des applications à l'éclairage de basse pression (e.g., lampes fluorescentes à cathode froide, CCFL - cold-cathode fluorescent lamps). La dernière région correspond à de forts courants (> 10^{-1} A) dus à une production importante d'électrons par l'émission thermoïonique qui est induite par le chauffage conséquent des électrodes, soit sous bombardement ionique, soit par préchauffage additionnel (cf. section 1.1.2). Du point de vue de l'application à l'éclairage, cette région à forts courants est utilisée dans des lampes à haute pression (HID-high intensity discharge), mais aussi à basse pression (lampes fluorescentes dites à cathode chaude opérant en "low-pressure arc discharge"). Pour ces dernières, l'émission thermoïonique est obtenue par un préchauffage additionnel et les courants vont de 70 à 400 mA, voire 800 à 1500 mA dans certains cas.

Comme l'application visée dans notre étude se restreint aux lampes à basse pression, sans préchauffage des électrodes, nous rappelons brièvement les caractéristiques électriques du régime correspondant, à savoir la décharge luminescente.



Figure 1.9 Courbe générique de la caractéristique I-V d'une décharge DC [27].

Décharge luminescente. Le domaine opératoire de ce type de décharges, des dimensions centimétriques, s'étend de quelques mTorr à quelques Torr en pression et, en termes de densité de courants, de quelques mA/cm² jusqu'à la dizaine de mA/cm² obtenus pour des tensions d'entretien de quelques centaines de volts. La décharge est structurée spatialement en différentes régions [27,28,29] sombres et lumineuses, de luminosité et de couleur différentes, comme il est montré sur l'image de la figure 1.10-a, obtenue lors de nos expérimentations. Cette structuration découle de l'auto-organisation de la charge d'espace au long de la décharge pour assurer la continuité du courant et son entretien en régime autonome.



Figure 1.10 a) Image d'une décharge DC Ar-N₂ avec ses zones distinctes : Chute Cathodique (CC) ; Lueur Négative (LN), Espace Sombre de Faraday (ESF), Colonne positive (CP) ; b) Schéma représentatif du potentiel et du champ électrique le long de la décharge [28]. Conditions opératoires : 500 mTorr.

De la figure 1.10, on peut retenir quatre principales zones, de la cathode vers l'anode, comme suit : chute cathodique (CC), lueur négative (LN), espace sombre de Faraday (ESF) et colonne positive (CP).

La chute cathodique peut être elle-même composée de plusieurs zones d'intensité différente, mais globalement elle est le siège d'une accumulation d'ions (charge d'espace positive) qui sont accélérés vers la cathode avec des énergies comparables à la valeur du potentiel appliqué. Du fait de leur forte énergie, la cathode émet des électrons secondaires qui sont à leur tour accélérés en sens opposé pour contribuer à la production d'un premier plasma, le plasma de LN, de très forte intensité lumineuse et de maximum de densité d'espèces chargées près de la chute cathodique. Les collisions inélastiques produites dans la LN représentent une perte importante en énergie pour les électrons, ce qui a pour conséquence la diminution en concentration de charges et d'espèces excitées dans la zone sombre de Faraday où le plasma de LN diffuse.

Si l'anode est placée à une distance supérieure à la longueur de relaxation en énergie des électrons (qui correspond à la longueur de la zone ESF), la continuité du courant entre les deux électrodes ne peut être assurée que par une ré-accélération de ces électrons, pour en produire un deuxième plasma de jonction avec l'anode (le plasma de CP). Cette ré-accélération est soutenue par un accroissement du champ électrique dans la CP, comme illustré sur le schéma représentatif (joint à l'image de la figure 1.10) de la répartition du potentiel et du champ électrique d'entretien le long de la décharge.

La colonne positive est gouvernée par un champ électrique de faible intensité (généralement de quelques V/cm) et, de ce fait, le plasma est moins dense que celui de LN (joint à la CC) et la lumière émise est moins intense. La faible valeur de champ électrique est justifiée par le fait que celui-ci est un paramètre passif de la décharge, ce qui signifie que son intensité s'ajuste pour que la puissance prise au champ par les électrons compense celle perdue par des mécanismes collisionnels et par diffusion vers les parois. Ce champ n'est donc pas lié à la différence de potentiel appliqué entre les deux électrodes, mais à la température électronique, cette dernière étant fixée par les pertes et, donc, par les conditions opératoires (nature et pression du gaz, géométrie du système).

Le surplus de la différence du potentiel appliqué se retrouve dans les zones encadrant la CP et, plus particulièrement, dans la CC, ce qui explique la haute intensité du champ électrique dans cette zone. La CC constitue une zone de perte de puissance importante, puisqu'elle est en grande partie dépensée pour accélérer les ions et, comme déjà mentionné plus haut, pour produire les électrons secondaires. Toutefois, ces électrons sont indispensables à l'équilibre électrique global de la décharge et une décharge à électrodes ne peut exister sans la chute cathodique. De plus, la forte énergie des ions conduit à la pulvérisation de la cathode qui, sans compter sa dégradation, devient une source de contamination du gaz.

Du point de vue de l'application à l'éclairage, les deux processus intrinsèques à la chute cathodique (perte importante de puissance pour l'accélération des ions, pulvérisation de la cathode) constituent une

limitation importante, d'où le recours, il y a 70 ans, à l'utilisation de cathodes chaudes pour la génération directe d'électrons par émission thermoïonique. Toutefois, comme il sera précisé dans le chapitre 4, l'inconvénient majeur d'une cathode chaude survient de sa forte réactivité chimique et des contraintes qui en découlent en termes de choix de gaz émetteur.

Par contre, des plasmas de colonne positive et de lueur négative sans chute cathodique à forte différence de potentiel, peuvent être produits en utilisant des champs de haute fréquence (HF), comme il sera montré dans le chapitre 3.

1.3 Décharges Hautes Fréquences

Les décharges HF sont obtenues par l'application d'un champ électrique périodique de fréquence située dans le domaine des radiofréquences (1 à 300 MHz) et micro-ondes (0,3 à 300 GHz). Dans notre cas d'étude, la fréquence est fixée à f = 2,45 GHz. L'onde électromagnétique est appliquée au gaz à travers des diélectriques (transparents aux ondes HF) pour produire et maintenir le plasma. La différence majeure avec une décharge DC réside en l'absence d'électrodes et, donc, de chute cathodique telle que requise dans les décharges DC.

1.3.1 Caractéristiques électriques d'un plasma HF

Le comportement d'une onde de la forme $Ee^{j(-k.r+\omega t)}$ de pulsation $\omega = 2\pi f$ en interaction avec un milieu de conductivité électrique σ (ou de permittivité diélectrique relative ε) est donné par l'équation de dispersion qui relie le nombre d'onde k aux propriétés électriques du milieu considéré : $k(\omega, \sigma)$ ou $k(\omega, \varepsilon)$. Cette équation résulte du système d'équations de Maxwell et, pour un milieu infini homogène et isotrope (σ et ε grandeurs scalaires), elle est donnée par l'équation 1.2 :

$$k^{2} = \left(\frac{\omega}{c}\right)^{2} \left[1 + \frac{\sigma}{j\omega\varepsilon_{0}}\right] = \left(\frac{\omega}{c}\right)^{2} \varepsilon$$
(1.2)

avec le lien entre la conductivité et la permittivité :

$$\varepsilon = \left[1 + \frac{\sigma}{j\omega\varepsilon_0}\right] \tag{1.3}$$

Dans ces expressions, c représente la célérité de la lumière et ε_0 la permittivité du vide.

Lorsque le milieu est un plasma de densité *n*, la conductivité électrique est celle des électrons (équation 1.4, déduite des équations qui décrivent leur mouvement sous l'effet du champ HF (de pulsation ω) et des collisions (de fréquence v) avec les neutres pour le transfert de quantité de mouvement :

$$\sigma = \frac{n e^2}{m_e (\nu + j\omega)} = \frac{\varepsilon_0 \omega_p^2}{(\nu + j\omega)}$$
(1.4)

où :

$$\omega_p = \sqrt{\frac{n \, e^2}{\varepsilon_0 m_e}} \tag{1.5}$$

représente la pulsation propre d'oscillation des électrons.

En effet, en raison de leur très faible masse par rapport à celle des ions, les propriétés électriques du plasma sont imposées par les électrons qui peuvent répondre dans la nanoseconde à l'action d'un champ HF $(2\pi/\omega_p \sim 1 \text{ ns})$, alors que le temps de réponse des ions est de 3 ordres de grandeur plus grand $(2\pi/\omega_{pi} \sim 1 \text{ µs})$ et, par conséquent, peuvent être considérés comme inertes à l'action d'un champ de fréquences de l'ordre du GHz.

En introduisant l'expression 1.4 dans les équations 1.3 et 1.2, on obtient :

$$\varepsilon = \left[1 - \frac{\omega_p^2}{(\omega^2 - j\nu\omega)}\right] \tag{1.6}$$

pour la permittivité du plasma et :

$$k^{2} = \left(\frac{\omega}{c}\right)^{2} \left[1 - \frac{\omega_{p}^{2}}{\omega^{2} - j\omega v}\right] = (\beta - j\alpha)^{2}$$
(1.7)

pour le nombre d'onde avec une partie réelle β associée à la propagation de l'onde, et une partie imaginaire $\alpha > 0$ liée à l'atténuation du champ HF due au transfert d'énergie aux électrons. L'inverse de ce dernier coefficient définit la profondeur de pénétration du champ HF dans le plasma, appelée épaisseur de peau $\delta = \alpha^{-1}$.

Selon la relation d'ordre entre les différentes grandeurs caractérisant le plasma (ω_p , ν) et l'onde (ω), l'équation 1.7 formule les conditions de propagation et d'absorption de l'onde par le milieu considéré.

Par exemple, dans le domaine de hautes fréquences (ou plasma faiblement collisionnel), $v \ll \omega$, le nombre d'onde devient :

$$k = \left(\frac{\omega}{c}\right) \sqrt{1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2}} = \beta - j\alpha \tag{1.8}$$

et, selon la densité du plasma, celui-ci peut être purement réel ou purement imaginaire. Effectivement, lorsque la densité est telle que $\omega_p < \omega$, le nombre d'onde est totalement réel, $k = \beta = \omega/c$, ce qui signifie que l'onde traverse le milieu sans lui céder de son énergie (sans atténuation, $\alpha = 0$ et $\delta \rightarrow \infty$). A l'opposé, pour $\omega_p > \omega$, le nombre d'onde devient purement imaginaire, $k = -j\alpha = -j\omega_p/c$. Dans ce cas, l'onde ne peut plus se propager ($\beta = 0$) et le champ s'évanouit, sans transfert d'énergie, sur une épaisseur de peau d'autant plus petite que la densité est élevée ($\delta = c/\omega_p$).

La transition d'un milieu de fréquences dispersives ($\omega_p < \omega$) à un milieu de fréquences réactives ($\omega < \omega_p$) se produit à $\omega_p = \omega$ et la densité électronique n_c correspondante est appelée densité critique (*cf.* équation 1.5 avec $\omega_p = \omega$):

$$n_c = \frac{\varepsilon_0 m_e \,\omega^2}{e^2}.\tag{1.9}$$

Autrement dit, l'onde ne peut se propager que dans des plasmas de densité sous-critique :

$$n < n_c \left(\omega > \omega_p \right), \tag{1.10}$$

c'est-à-dire pour des densités < 7,5 10^{10} cm⁻³ dans le cas d'une onde de fréquence de 2,45 GHz. Pour des fréquences de collisions intermédiaires ($\nu \sim \omega$), le nombre d'onde comporte aussi bien une partie réelle qu'imaginaire. Une propagation au-delà de la densité critique devient alors possible avec un transfert d'énergie sur des distances plus ou moins grandes selon la densité du plasma ($\delta \propto 1/\omega_p$).

1.3.2 Caractéristiques d'un plasma HF délimité par des surfaces

De manière générale, les plasmas HF sont délimités par des surfaces métalliques et/ou diélectriques, formant ainsi un système plus complexe, à plusieurs milieux. Le comportement de l'onde sera alors décrit par les équations de Maxwell appliquées à chaque milieu caractérisé par leurs propriétés
électriques spécifiques et par les conditions de continuité des composantes de champs parallèles aux interfaces [30,31].

Configuration cylindrique / onde de surface cylindrique. Pour un dispositif cylindrique à trois milieux (cf. figure 1.11) composé d'un plasma uniforme radialement (de permittivité ε_p donnée par l'équation 1.6) contenu dans un tube diélectrique (de permittivité ε_d , de diamètre intérieur *a*, et de diamètre extérieur b) et d'un milieu environnant (de l'air, de permittivité ε_a), on obtient un système d'équations pour les champs électrique $\mathbf{E} = \mathbf{E}(r,\theta)e^{-jkz}e^{j\omega t}$ et magnétique $\mathbf{H} = \mathbf{H}(r,\theta)e^{-jkz}e^{j\omega t}$ qui conduit à l'équation de dispersion :

$$\mathbf{F}\left[\omega, k_p\left(\varepsilon_p(\mathbf{n}, \mathbf{v})\right), k_d(\varepsilon_d), k_a(\varepsilon_a)\right] = 0 \tag{1.11}$$

où $k_{p,d,a}^2 = \left(\frac{\omega}{c}\right)^2 \varepsilon_{p,d,a} - k^2$ (cf. annexe 4) représente le nombre d'onde dans les différents milieux (p pour plasma, d pour diélectrique, a pour air) et k représente le nombre d'onde axial donné par l'équation 1.7 ($k = \beta - j\alpha$). La résolution numérique de l'équation 1.11 permet d'établir les conditions et les modes de propagation dans la structure choisie, c'est-à-dire, la distribution et l'intensité des composantes de champ (électrique et magnétique) dans chaque milieu.

Pour un système cylindrique similaire à celui utilisé dans nos expérimentations, les composantes de champs sont E_r , E_z et H_{φ} (*cf.* annexe 4), ce qui correspond à un mode fondamental transverse magnétique à symétrie azimutale (TM₀₀). Le profil radial des composantes du champ électrique, ainsi que la norme du vecteur de Poynting sont représentés sur les figures 1.11-a et 11-b. Ceux-ci ont été obtenus par la simulation numérique (COMSOL Multiphysics) d'un système de géométrie et de propriétés électriques comme suit : a = 7 mm, b = 9 mm, $\varepsilon_a = 1$, $\varepsilon_d = 3,8$ et $\varepsilon_p = -9,8$ correspondant à un plasma homogène de densité $n = 8.10^{11}$ cm⁻³ et de fréquence de collisions v de même ordre de grandeur que la pulsation ω de l'onde.



Figure 1.11 Simulation HF d'une structure cylindrique guidée par un tube en quartz en présence de plasma : a) Profil radial de la norme des composantes E_z et E_r du champ électrique en z = 40 mm ; b) Norme du vecteur de Poynting. Conditions d'entrée : $n = 8 \ 10^{11} \text{ cm}^{-3}$, $v = 2 \ 10^9 \text{ s}^{-1}$,

 $P_T = P_i - P_r = 10$ W, géométrie : a = 7 mm, b = 9 mm.

La figure 1.11-a montre un maximum d'intensité des champs au niveau de la surface du diélectrique, d'où le nom d'onde de surface. Naturellement, à l'intérieur du tube, l'intensité du champ est diminuée à cause de l'absorption de puissance par le plasma. La figure 1.11-b témoigne de la propagation de l'onde de surface et, donc, de la présence du plasma sur des longueurs bien plus grandes que les dimensions transversales du tube de décharge.

Il est important de noter que les ondes de surface sont des modes de propagation générés en présence du plasma (d'où leur nom de *modes plasma* pour les différencier des *modes de guide* qui peuvent exister dans une structure guidée exempte de plasma). En effet, l'équation de dispersion 1.11 conduit à un coefficient de propagation de l'onde dans la direction axiale, $\beta > 0$, si la densité du plasma est non-nulle, $n \neq 0$. Par exemple, dans le cas d'un plasma faiblement collisionnel ($v < \omega$), la condition de propagation est donnée par l'équation 1.12 [32] :

$$\omega_p > \omega \sqrt{1 + \varepsilon_d} \tag{1.12}$$

et, en tenant compte de l'équation 1.5, elle conduit à des densités supérieures à une valeur critique :

$$n > n_c = 3,6 \ 10^{11} \ cm^{-3} \ (pour \ 2,45 \ GHz \ et \ \varepsilon_d = 3,8)$$
 (1.13)

Cette condition, qui est l'opposée de la condition 1.10 de propagation dans un milieu infini, indique que, si la puissance HF initie à son point d'injection un plasma surcritique, celui-ci crée les conditions de propagation d'une onde de surface. Autrement dit, le plasma forme le support de propagation de l'onde qui, à son tour, cède de sa puissance pour entretenir le plasma. L'onde et le plasma avancent simultanément dans la direction axiale (longitudinale) tant que la densité du plasma reste supérieure à la densité critique ($n > n_c$). La colonne de plasma ainsi obtenue est alors caractérisée par une densité en début de colonne, établie par la puissance au point d'injection, et une longueur limitée par la densité en fin de colonne, $n \approx n_c$.

Configuration planaire. Pour rester dans la même rubrique des caractéristiques d'un plasma délimité par des surfaces (métalliques, diélectriques), nous avons procédé de la même manière que précédemment pour une configuration également utilisée dans le cadre de ce travail. Sa configuration est semblable à celle utilisée pour l'onde de surface cylindrique, à l'exception du diélectrique. Dans le cas présent, ce diélectrique est entièrement contenu entre deux électrodes (voir figure 1.14-b), formant ainsi un coax qui sera dénommé tout le long de ce manuscrit *cathode planaire* (avec le diélectrique de passage des micro-ondes appelé aussi tube de cathode). Le plasma est compris dans un autre tube diélectrique de diamètre légèrement plus grand que celui de la cathode planaire, d'où la dénomination de décharge à cathode planaire, ou encore décharge planaire.

Le profil radial des composantes du champ électrique et la norme du vecteur de Poynting, représentés sur les figures 1.12-a et 1.12-b, ont été obtenus pour un système de géométrie et de propriétés électriques comme suit : Ø tube de cathode (a = 11 mm, b = 13 mm), Ø tube de décharge = 14-16 mm, $\varepsilon_a = 1$, $\varepsilon_d = 3,8$ et $\varepsilon_p = -9,8$ correspondant à un plasma homogène de densité $n = 8.10^{11} \text{ cm}^{-3}$ et de fréquence de collisions ν de même ordre de grandeur que la pulsation ω de l'onde.



Figure 1.12 Simulation HF d'une structure à cathode planaire en présence d'un plasma :
a) Profil radial de la norme des composantes E_z et E_r du champ électrique en z = 1,5 mm ;
b) Norme du vecteur de Poynting en r = 4,5 mm. Conditions d'entrée : n = 8 10¹¹ cm⁻³, v = 2 10⁹ s⁻¹, P_T = P_i - P_r = 10 W, géométrie : Ø tube de cathode = 11-13 mm, Ø tube de décharge = 14-16 mm.

La figure 1.12 prouve la propagation de l'onde en direction axiale (figure 1.12-b) avec une atténuation rapide sur quelques mm, due à l'absorption de la puissance par le plasma. Etant donnée la quasicontinuité entre les deux diélectriques (tube de cathode et tube de décharge), la formation d'une onde de surface cylindrique peut être également observée (maximas de champs sur face extérieure du tube de décharge), mais dans l'ensemble la puissance est rapidement atténuée.

Par comparaison des figures 1.11 et 1.12, on peut avancer que le plasma obtenu avec une configuration cylindrique se développe sur des plus grandes longueurs que celles d'un plasma à cathode planaire.

1.3.3 Dispositifs de production des décharges à onde de surface

Les dispositifs de production des décharges HF comportent nécessairement un applicateur d'onde électromagnétique [33] permettant de transmettre la puissance HF du générateur et de lancer l'onde dans l'enceinte de la décharge. Les applicateurs/lanceurs d'onde les plus couramment utilisés pour les décharges à onde de surface dans des tubes cylindriques sont le surfatron (figure 1.13-a) et le surfaguide (figure 1.13-b).



Figure 1.13 Applicateurs à onde de surface : a) Surfatron (cavité représentée en ¾ de coupe) ; b) Surfaguide.

Le surfatron (figure 1.13-a) est une boîte de forme cylindrique fermée par une cloison conductrice et traversée par un tube diélectrique dans laquelle la décharge est entretenue. Le tube est entouré par une bande conductrice axiale où un interstice permet la transmission du champs HF à la décharge. Dans le cas du surfaguide (figure 1.13-b), le tube diélectrique traverse un guide d'onde rectangulaire, l'interstice de lancement étant ménagé entre la paroi du guide d'onde et le tube.

Avec le déploiement des procédés plasma dans le domaine de la microélectronique, d'autres types d'applicateurs micro-onde ont été développés afin d'obtenir des plasmas de haute densité à basse et très basse pression pour des traitements plasma sur de grandes surfaces.

Dans les années 2000, le LPSC a proposé des applicateurs à structure coaxiale (ouvertes dans le demi plan infini) permettant d'obtenir des plasmas de grande surface grâce à une répartition spatiale judicieuse de plusieurs applicateurs. Ce type d'excitation coaxiale peut être également utilisé pour l'obtention des ondes de surface, aussi bien pour des applications de traitement de surface [34], que pour l'éclairage [35].

Dans le cadre de ce travail de thèse, nous avons utilisé des applicateurs à structure coaxiale en raison de la simplicité de réalisation et du plus faible encombrement par rapport aux surfatrons ou surfaguides. Les applicateurs à structure coaxiale empêchent également la création de plasma en amont du plan d'excitation, comme pour le surfatron ou le surfaguide, ce qui permet de générer la décharge dans une seule direction.

Plus précisément, deux types d'applicateurs coaxiaux ont été développés, *cylindrique et planaire* (figures 1.14-a et 1.14-b respectivement), qui se différencient par la terminaison du diélectrique de passage des micro-ondes : dans la configuration planaire, la terminaison du diélectrique et des conducteurs se trouvent dans un même plan, alors que dans la configuration cylindrique, le diélectrique dépasse largement le plan des conducteurs.



Figure 1.14 Applicateurs coaxiaux à onde de surface avec blindage représenté en ³/₄ de coupe : a) Cylindrique ; b) Planaire.

Ces deux applicateurs comportent un tronçon de ligne coaxiale constitué d'une âme centrale (conducteur intérieur) et d'un blindage (conducteur extérieur) séparés par un tube en quartz qui constitue le milieu de propagation de l'onde HF. Cette onde est guidée entre les deux conducteurs selon le mode de propagation fondamental TEM, *i.e.* avec un champ électrique de composante radiale (E_r) et un champ

magnétique de composante azimutale (H_{ϕ}). Le raccord de l'applicateur au générateur HF est réalisé par le biais de connecteurs de type N. Pour cette raison, l'âme centrale (conducteur intérieur) présente une forme conique de transition qui permet de relier le tronçon de l'applicateur au connecteur N.

Dans nos expérimentations, deux configurations cylindriques ont été mises en œuvre (figure 1.15). Celle-ci se différentient principalement par le positionnement du passage des micro-ondes par rapport au tube diélectrique.



Figure 1.15 Applicateurs à onde de surface cylindrique avec blindage représenté en ¾ de coupe : a) Interne ; b) Externe.

Dans le premier applicateur, le tube de décharge se trouve dans la continuité du diélectrique du tronçon coaxial et entoure l'âme centrale (figure 1.15-a) ; dans le second, le tube de décharge est emboité dans l'âme centrale du tronçon coaxial (figure 1.15-b), l'onde étant amenée par l'extérieur du tube de décharge. Pour les différencier, ces deux types d'applicateurs cylindriques seront appelés applicateurs cylindriques interne (âme centrale emboitée dans le tube de décharge) et externe (tube de décharge emboitée dans l'âme centrale), respectivement. Quelle que soit la structure, le champ résultant présente au-delà du plan de sortie de l'applicateur, une distribution comme celle indiquée sur la figure 1.11 (onde de surface cylindrique).

Conclusion du Chapitre 1

Dans ce chapitre, nous avons décrit le principe de fonctionnement des lampes fluorescentes pour en expliquer l'origine des hautes performances des lampes fluorescentes, mais aussi pour entrevoir ses inconvénients.

Les rappels sur la physique des décharges DC ont permis d'introduire les différents régimes de décharges et, en particulier, le régime luminescent d'intérêt dans notre étude. Nous retiendrons que, dans le cas d'une cathode froide, le bombardement ionique de la cathode et la production d'électrons secondaires qui en résulte permettent de maintenir l'équilibre électrique de la décharge et, donc, son entretien. Dans le cas d'une cathode chaude, comme celles utilisées dans les tubes fluorescents, l'entretien de la décharge est assuré par l'émission thermoïnique de la cathode. Dans les deux cas, la durée de vie de la cathode est limitée et l'utilisation des gaz additifs (potentiellement réactifs), autres que le mercure, pour l'émission UV devient interdite.

La description théorique de la propagation d'une onde électromagnétique dans un plasma délimité par des surfaces métalliques et/ou diélectriques a été donnée. Cela a été réalisé pour deux configurations distinctes et les résultats présentés (profils de champs électriques), nous ont permis de conclure, par anticipation, sur l'obtention d'un plasma à onde de surface (configuration cylindrique) plus étendu longitudinalement que celui obtenu en configuration planaire.

Nous avons également présenté, de manière schématique, les applicateurs d'onde à structure coaxiale utilisés pour l'obtention des plasmas HF. Par la même occasion, nous avons introduit la terminologie utilisée dans la suite du manuscrit, à savoir : cathode HF cylindrique ou décharge à onde de surface cylindrique et, par opposition, cathode planaire ou décharge à cathode planaire pour souligner le fait que, pour cette deuxième configuration, le diélectrique de passage des micro-ondes se trouve dans le même plan que les conducteurs coaxiaux (âme centrale et blindage), et que le plasma reste localisé près de la surface de la cathode HF.

CHAPITRE 2. Méthodes et techniques expérimentales

Introduction du Chapitre 2

Après la description de notre dispositif expérimental dans son intégralité (section 2.1), ce chapitre présente les différentes méthodes et techniques de caractérisation employées pour l'optimisation des performances de la lampe, que ce soit au niveau de la décharge ou de la fluorescence.

La section (2.2) est consacrée à la description des méthodes mises en œuvre pour la conception des cathodes HF préadaptées, *i.e.*, cathodes d'efficacité en transmission de puissance HF, du générateur à la décharge. Elle décrit les différentes étapes nécessaires à leur conception qui s'appuient à la fois sur la détermination (expérimentale) de l'impédance HF et sur des outils numériques (modélisation à 1 et 2 ports) pour simuler la propagation des micro-ondes.

Cette section présente également les deux méthodes basées sur l'interférométrie des ondes HF utilisées pour la détermination de la densité électronique d'une décharge à onde de surface cylindrique ou d'un plasma de colonne positive.

La section (2.3) présente les méthodes qui s'appuient sur l'analyse spectroscopique de l'émission optique de la décharge (SEO). La procédure de la détermination des différentes températures (excitation, rotationnelle, vibrationnelle) à partir des spectres d'émission est présentée pour chacune d'entre elles, en faisant l'hypothèse de l'équilibre de Boltzmann. Les valeurs obtenues sont interprétées au regard des températures utiles pour la description de nos décharges comme, par exemple, la température électronique et la température du gaz.

Enfin, la section (2.4), présente l'ensemble des méthodes de caractérisation radiométrique et photométrique d'une lampe. Après avoir introduit la radio-photométrie et les grandeurs associées, deux méthodes de caractérisation du flux lumineux total émis par une lampe et leurs dispositifs sont présentés.

2.1 Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental utilisé dans le cadre de l'étude des décharges hybrides ou à onde de surface est représenté schématiquement figure 2.1. La décharge est alimentée par un générateur DC qui délivre une tension V_g pouvant atteindre 630 V. Une résistance de ballast R_b de 23.8 k Ω est insérée dans le circuit dans le but de maintenir la décharge dans un régime luminescent et d'empêcher la transition vers le régime d'arc. La tension de décharge V_d , établie entre les deux électrodes, est donnée par la différence entre la tension du générateur et la chute de tension sur la résistance de ballast :

$$V_d = V_g - I_d R_b \tag{2.1}$$

L'alimentation HF de la cathode est effectuée à travers un adaptateur d'impédance pour l'optimisation de la transmission de la puissance délivrée par le générateur HF (2,45 GHz, 30 W).

Le tube de décharge est relié à un système de pompage et son étanchéité est assurée par des joints toriques. Les pressions de travail, situées dans le domaine du torr, sont obtenues en utilisant une pompe primaire et un débitmètre de contrôle du flux de gaz. Il est important de noter que le vide limite obtenu par une pompe primaire n'est que de $\sim 10^{-3}$ Torr, ce qui signifie que la décharge peut contenir des impuretés. La pression dans le tube de décharge est mesurée à l'aide de deux jauges : Pirani-Penning pour le vide limite et Baratron pour la pression du gaz plasmagène.



Figure 2.1 Dispositif expérimental de décharge.

Les composants additionnels utilisés dans le dispositif de la figure 2.1 (*i.e.*, résistance de ballast, adaptateur d'impédance) représentent clairement des sources de pertes de puissance, mais leur présence est indispensable lors des expérimentations préalables conduites pour la détermination des paramètres électriques (tension de décharge, puissance micro-onde) de fonctionnement en régime de décharge

luminescente, et pour l'optimisation énergétique de lampes à cathode HF. Il apparaît évident que, au final, les lampes doivent fonctionner sans ces composants et leur élimination du circuit fait partie des objectifs de ce travail.

Comme il sera montré dans le chapitre 3, la résistance de ballast n'est plus d'utilité dans un dispositif de lampe à cathode HF, et la tension de décharge V_d peut être directement fixée par l'alimentation DC sans risque de basculer en régime d'arc.

En ce qui concerne l'adaptateur d'impédance, celui-ci transforme et ajuste l'impédance entre ses deux extrémités jusqu'à ce que la valeur vue dans le plan de connexion de l'adaptateur au générateur HF devienne égale à 50 Ω . Dans ce cas, la puissance réfléchie par les deux composants (applicateur cathode HF et adaptateur) est réduite à zéro et un maximum de puissance est transmise à la décharge. Toutefois, lorsque la puissance réfléchie est nulle, nous avons déterminé que seulement ~75 % de la puissance HF du générateur est transmise à la décharge, la différence étant stockée/perdue dans l'adapteur d'impédance et les connecteurs utilisés. L'obtention d'un rendement en transmission proche de 100% requiert la réduction, voire l'élimination des composants auxiliaires, et l'utilisation de cathodes pré-adaptées en impédance (*cf.* section 2.2).

Pour mémoire, les applicateurs réalisés dans le cadre de ce travail comportent un tronçon de base de type coaxial et selon la configuration de sa terminaison, ces applicateurs sont regroupés en deux catégories : cylindrique et planaire (*cf* figure 1.14, section 1.3.3). Comme ces applicateurs d'onde HF sont polarisés négativement par rapport à l'autre électrode du dispositif (*cf*. figure 2.1), dans la suite de ce manuscrit on utilisera aussi la dénomination de cathode HF planaire ou cylindrique, même en l'absence de l'application d'une tension DC.

2.2 Méthodes de conception de cathode et de caractérisation HF

2.2.1 Principe de conception de cathode HF pré-adaptée

L'optimisation de l'efficacité lumineuse de la lampe passe nécessairement par l'optimisation du rendement énergétique de décharge et, donc, par la conception de cathodes HF efficaces du point de vue énergétique. Cela revient à concevoir des cathodes HF qui transmettent la puissance HF du générateur vers le plasma avec un minimum de réflexion en rendant ainsi l'utilisation d'un adaptateur d'impédance caduque. Autrement dit, la cathode HF doit prendre le rôle de ce dernier et de réaliser, par sa construction, une transformation d'impédance de Z_c (impédance de la charge au niveau du plan d'injection de la puissance dans la décharge, appelé *port de sortie* de la cathode HF) à Z_e (impédance au niveau du plan de connexion de la cathode HF et du générateur, appelé *port d'entrée*). On parlera de *cathode HF pré-adaptée à la charge* $Z_c = Z_p$ *de la décharge* lorsque l'impédance vue par le générateur

dans le port d'entrée est de 50 Ω . Dans ce cas, un maximum de transmission de puissance HF (minimum de réflexion) est obtenu.

En tant que composant de circuit, la cathode HF peut être représentée par un quadrupôle chargé à ses deux ports par les impédances Z_e et Z_c , respectivement (figure 2.2).



Figure 2.2 Schéma d'un quadrupôle chargé par une impédance de 50 Ω au port d'entrée, et par une impédance Z_c au port de sortie.

Un quadrupôle est entièrement caractérisé par un jeu de 4 paramètres intrinsèques, indépendants des charges (Z_e , Z_c) et de la puissance HF. Ces paramètres sont donc propres à la cathode HF (quadrupôle) et définis par sa géométrie, par la permittivité relative des matériaux qui composent le milieu de propagation, ainsi que par la fréquence d'excitation de l'onde. Selon le formalisme utilisé pour décrire un quadrupôle, ces paramètres sont S_{ij} ou Z_{ij} (voir annexe 2).

Les paramètres S_{ij} expriment la capacité de la cathode HF à transmettre ou à réfléchir l'onde HF, alors que les paramètres Z_{ij} permettent d'établir la relation de réciprocité entre les impédances Z_c et Z_e des charges aux ports de sortie et d'entrée respectivement [36,37] :

$$Z_c = \frac{Z_{21}Z_{12}}{Z_{11} - Z_e} - Z_{22} \tag{2.2}$$

Ainsi, la connaissance des paramètres Z_{ij} d'une cathode HF donnée (adaptée ou non à la décharge) permet de remonter à l'impédance dans un plan à partir de la valeur connue dans un autre plan. Cette méthode de changement de plan d'impédance, s'avère donc très utile lorsque l'on veut déterminer l'impédance dans un plan qui n'est pas accessible aux mesures, ce qui est le cas pour les cathodes HF utilisées au cours de cette thèse. En effet, leur géométrie ne permet pas de mesurer l'impédance de décharge (Z_p) directement dans le port de sortie (voir section 2.2.3) et, par conséquent, celle-ci ne peut être déterminée qu'à partir de mesures au port d'entrée (Z_e), et en ayant déterminé au préalable les paramètres Z_{ij} par une approche numérique (*cf.* section 2.2.2). Si ces paramètres Z_{ij} correspondent à une cathode HF adaptée à la décharge, la valeur mesurée au port d'entrée sera nécessairement $Z_e = 50 \Omega$ (ce qui correspond à un coefficient de réflexion à ce port $|S_{11}|^2 = 0$). Lorsque cette même cathode HF (de mêmes paramètres Z_{ij}) n'est pas adaptée, la valeur mesurée au port d'entrée sera $Z_e \neq 50 \Omega$ ($/S_{11}/^2 > 0$).

Pour concevoir une cathode HF pré-adaptée dont l'impédance au port d'entrée est imposée ($Z_e = 50 \Omega$), il est alors nécessaire de connaître l'impédance de la décharge Z_p à laquelle elle doit être adaptée. Comme cette grandeur dépend des conditions opératoires telles que la géométrie de la cathode HF, la nature et la pression du gaz, sa valeur doit être déterminée expérimentalement. Par conséquent, la conception d'une cathode HF ne peut être réalisée qu'en plusieurs <u>étapes</u> :

1) La première étape consiste à mesurer l'impédance Z_e avec une cathode HF test (non pré-adaptée), dont les paramètres Z_{ij} sont calculés par l'approche numérique. Avec la valeur mesurée, $Z_e \neq 50 \Omega (|S_{11}|^2 \neq 0)$, la méthode de changement de plan d'impédance (équation 2.2) est appliquée pour en déterminer l'impédance de la décharge pour un jeu de conditions opératoires.

2) La valeur Z_p expérimentale obtenue et celle imposée au port d'entrée ($Z_e = 50 \Omega$) sont ensuite utilisées comme valeurs imposées aux ports de sortie et d'entrée de la cathode HF à modéliser. Cette 2^{ème} étape de modélisation consiste en la modification de la géométrie de l'applicateur (modification des Z_{ij}) jusqu'à ce que la puissance réfléchie au niveau du port d'entrée soit minimale ($|S_{II}|^2 \rightarrow 0$).

3) La 3^{ème} étape comprend la réalisation mécanique et le montage de la cathode HF.

4) La dernière étape est celle de l'évaluation expérimentale de ses performances. Les résultats escomptés sont : Z_e proche de 50 Ω et $|S_{11}|^2 \rightarrow 0$.

L'étape 2 de cette procédure est précisée dans la section 2.2.2 qui suit (*cf.* modèle à deux ports). Toutefois, celle-ci (tout comme l'étape 1) ne peut être appliquée que pour les géométries de cathode HF qui permettent leur représentation par un quadrupôle chargé dans son plan de sortie par une charge Z_c , autrement dit pour une cathode HF à terminaison planaire. Lorsque la géométrie n'est plus planaire, une autre méthode plus générale (générale puisqu'elle se prête également à la configuration planaire) est utilisée (section 2.2.2, modèle à un port).

2.2.2 Approche numérique pour la conception d'une cathode HF pré-adaptée à une impédance donnée

L'approche numérique employée pour la conception d'une cathode HF pré-adaptée est basée sur la modélisation d'éléments finis, réalisée à l'aide du module Hautes Fréquences (HF) du logiciel COMSOL Multiphysics. Il s'agit d'une modélisation de type fréquentiel qui fait volontairement abstraction de la composante temporelle de l'onde électromagnétique et fournit la répartition spatiale du champ électrique dans le domaine modélisé à un instant donné.

Pour la conception de cathode HF, deux modèles ont été utilisés : le *modèle à deux ports* (*cf.* figure 2.2) et le *modèle à un port* (*cf.* figure 2.4).

Le *modèle à deux ports*, employé en mode propagation, permet de déterminer les paramètres S_{ij} (transmission/réflexion) d'une cathode HF chargée à ses deux ports par des impédances $Z_e = 50 \Omega$ et $Z_c = Z_p$ imposées et, donc, d'en optimiser la conception (géométrie) par la recherche d'un minimum de réflexion. Le passage en mode circuit, permet de relever les paramètres intrinsèques Z_{ij} de la cathode HF, utiles à la détermination de l'impédance de la décharge Z_p par la méthode de changement de plan d'impédance (*cf.* étape 1, section 2.2.1).

A titre d'exemple, la figure 2.3-a présente une cathode HF de configuration planaire conçue numériquement par le modèle à deux ports. Les variables géométriques de simulation sont celles qui définissent la forme et les diamètres de l'âme centrale, ainsi que la position des gorges de joint d'étanchéité au vide et ce, pour un tube de cathode de longueur 65 mm et de diamètre Ø11/13 mm donnés. La géométrie de cette cathode HF, optimisée pour être adaptée à Z_p (Ω) = 1,7 +j.1,4, permet de minimiser la réflexion de l'onde (*i.e.*, $|S_{11}|^2 \rightarrow 0$), comme il est montré sur la figure 2.3-b. Dans l'exemple de cette figure, la seule variable de simulation est la position de la gorge de joint 1, les autres paramètres étant maintenus fixes. On peut noter que cette cathode HF est capable de transmettre plus de 95% de puissance (moins de 5% de réflexion) pour une position de la gorge de joint 1 comprise entre 50 et 62 mm, voire 100 % (0% de réflexion) pour un domaine plus restreint, autour de 57 mm.



Figure 2.3 a) Schéma d'une cathode HF planaire ; b) évolution du coefficient de réflexion $|S_{11}|^2$ en fonction de la position de la gorge de joint 1 (modèle à deux ports).

Les paramètres Z_{ij} de la cathode HF dans sa configuration optimale (100 % de transmission) sont déterminés selon la procédure détaillée dans la section précédente et, toujours à titre d'exemple, indiqués dans le tableau 2.1.

<i>I</i> ₁ (courant au port d'entrée)	I_2 (courant au port de sortie)	Paramètre Z	Re (Z)	$Im\left(Z ight)$
0	1 A	$Z_{11} = \frac{V_1}{I_1}$	0	-98,2 i
1 A	0	$Z_{22} = \frac{V_2}{I_2}$	0	-2,8 i
0	1 A	$Z_{12} = \frac{V_1}{I_2}$	0	-15,6 i
1 A	0	$Z_{12} = \frac{V_2}{I_1}$	0	-15,6 i

Tableau 2.1 Paramètres Z_{ij} d'une cathode HF planaire, optimisée en transmission de puissance.

La valeur zéro de la partie réelle de ces paramètres signifie l'absence de pertes ohmiques de puissance le long de la cathode HF.

Modèle à un port. Certaines configurations de cathode HF, comme la configuration onde de surface cylindrique (figure 1.15), ne peuvent être simulées par le modèle à deux ports car le port de sortie n'est plus délimité par un plan et il n'est plus possible de lui associer une charge Z_c . Dans ce cas de figure, il faut recourir au *modèle à un port* (figure 2.4), où le port de sortie est remplacé par un ou plusieurs milieux homogènes de permittivités électriques données. Lorsqu'il s'agit d'un milieu plasma, les équations 1.4 et 1.6 montrent que ses propriétés électriques dépendent de la fréquence de collisions v et de la densité électronique n et, de ce fait, celles-ci constituent des paramètres d'entrée du modèle. Au niveau de l'âme centrale et du conducteur extérieur une frontière métallique est imposée. Les autres frontières du domaine sont définies comme des couches totalement absorbantes simulant ainsi une dispersion du champ HF à l'infini. La puissance HF injectée, l'impédance au niveau du port d'entrée, et le mode de propagation à ce même niveau, sont également fixés par l'utilisateur.



Figure 2.4 Schéma de principe utilisé dans le modèle à un port.

Le modèle à un port permet d'optimiser la configuration d'une cathode HF dans son environnement (air et/ou plasma) par l'application du formalisme S_{ij} et la recherche d'un minimum de coefficient de réflexion ($/S_{11}/^2 \rightarrow 0$). Comme déjà précisé, en l'absence d'une terminaison planaire, il n'est plus possible de déterminer les paramètres Z_{ij} et d'appliquer la méthode de changement de plan d'impédance pour en déduire l'impédance de la décharge. En revanche, ce modèle donne une indication de la répartition du champ électrique dans le système et permet d'estimer la part de la puissance HF perdue à l'extérieur de la décharge.

La figure 2.5 est un exemple obtenu pour la cathode cylindrique dite externe, correspondant à la configuration présentée sur la figure 1.15-b. Le plasma est contenu dans le tube de décharge sur une longueur de 70 mm et les paramètres d'entrée de la simulation sont : $P_T = P_i - P_r = 10$ W pour la puissance injectée, $Z_e = 50 \Omega$ pour l'impédance d'entrée, le mode fondamental TEM au port d'entrée (en raison

de la configuration coaxiale de la cathode HF), $n = 8.10^{11}$ cm⁻³ pour la densité du plasma, et $v = 2.10^9$ s⁻¹ pour la fréquence de collisions.





Dans le résultat de simulation présenté figure 2.5, on peut observer les caractéristiques d'une onde de surface, comme celles montrées sur la figure 1.11, à savoir : un champ présentant un maximum d'intensité le long de la surface extérieure du tube de décharge et une forte atténuation du champ dans le plasma (à l'intérieur du tube) due à l'absorption de puissance par ce milieu. La représentation de la figure 2.5, figée à un instant de temps quelconque, ne permet pas de montrer la progression longitudinale de l'onde, mais on peut l'admettre par l'étendue du champ le long du tube de décharge. Le calcul du flux de puissance, effectué pour cet applicateur optimisé (*i.e.*, $|S_{11}|^2 \sim 0$) montre que ~21% de la puissance est rayonnée dans l'air, ce qui revient à un maximum de ~79% déposé dans le plasma si l'on néglige les pertes dans le diélectrique.

L'optimisation de la géométrie de cet applicateur a été effectuée de manière progressive pour atteindre un minimum de réflexion au port d'entrée. La figure 2.6 présente l'exemple de l'effet de la hauteur de l'âme centrale sur le coefficient de réflexion lorsque les autres paramètres géométriques sont fixés.



Figure 2.6 a) Schéma d'une cathode cylindrique externe ; b) Evolution du coefficient de réflexion $|S_{11}|^2$ en fonction de la hauteur *h* de l'âme centrale.

2.2.3 Dispositif de mesures HF et validations expérimentales

L'Analyseur de Réseau Vectoriel (ARV, modèle Agilent 8753E), présenté sur la figure 2.7, est un outil de caractérisation de dispositifs HF qui donne accès aux grandeurs caractéristiques d'un composant ou d'un ensemble de composants (*e.g.*, coefficient de réflexion, impédance, déphasage entre signaux).



Figure 2.7 Schéma du dispositif de mesures HF (méthode A/R).

Le coupleur bidirectionnel inséré dans le dispositif de la figure 2.7 est un élément de circuit HF à quatre ports qui relie le générateur à l'applicateur (ports 1 et 2) et transmet à l'ARV (via les ports 3 et 4) une faible fraction (via des atténuateurs intégrés de -20 dB) des signaux incident et réfléchi. Des atténuateurs supplémentaires (-30 et -16 dB) sont également insérés dans le circuit afin de limiter la puissance sur les ports de l'ARV et de protéger ainsi ses circuits internes.

Pour les mesures à un port accessible à l'expérimentateur, l'ARV doit être calibré au même niveau. La calibration de l'ARV étant réalisée à l'aide d'un kit commercial (85032 B) avec des connecteurs de type N, les mesures ne peuvent être réalisées qu'aux ports qui possèdent ce type de connexion. Pour notre dispositif expérimental (figure 2.7), le port de mesure/calibration correspond donc au port d'entrée de la cathode HF, puisqu'il n'y a pas de terminaison de type N à son port de sortie.

Dans la pratique, nous effectuons des mesures de coefficient de réflexion (S_{11}) et d'impédance au port d'entrée (Z_e) pour valider la conception et/ou le fonctionnement des cathodes HF. Comme précisé dans la section 2.2.1, lorsqu'une cathode HF est adaptée à la décharge, la valeur Z_e mesurée au port d'entrée est nécessairement proche de celle imposée par le générateur HF (50 Ω) et le coefficient de réflexion S_{11} présente un minimum ($/S_{11}/^2 = 0$). A travers ces deux grandeurs, nous avons vérifié la concordance entre les résultats obtenus, d'une part, par le modèle à un port pour les deux cathodes HF préadaptées, montrés sur les figures 2.3 et figure 2.6, et d'autre part, par les mesures ARV effectuées avec les cathodes HF correspondantes mises en œuvre.



Figure 2.8 Comparaison des profils du coefficient de réflexion $|S_{11}|^2$ simulé et mesuré : a) pour une cathode planaire ; b) pour une cathode cylindrique externe.

La figure 2.8 présente la réponse fréquentielle d'une cathode planaire (figure 2.8-a) et cylindrique externe (figure 2.8-b) rayonnant dans le vide. On peut noter une concordance satisfaisante entre le profil simulé et le profil expérimental sur tout le domaine de fréquences. Les écarts observés pourraient être expliqués, du point de vue de la modélisation, par des effets de maillage à des niveaux sensibles de l'applicateur (*e.g.*, gorges de joints) et, du point de vue expérimental, par les tolérances mécaniques des pièces qui le composent. La forte réflexion ($|S_{11}|^2 > 85$ %) est due au fait que ces applicateurs ne sont pas préadaptés pour un rayonnement dans le vide mais le sont pour être adaptés à une décharge. Toutefois, nous avons effectué ce test comme une validation préliminaire du modèle à 1 port.

La validation du modèle à 1 port pour ces deux mêmes cathodes HF en fonctionnement, c'est-à-dire lorsqu'elles produisent un plasma, consiste à mesurer l'impédance au port d'entrée (Z_e) et à la comparer à la valeur imposée dans la simulation. Les valeurs expérimentales, $Z_e(\Omega) = 51,4 + j$ 4,4 pour la configuration planaire et $Z_e(\Omega) = 51,6 - j$ 7,0 pour la configuration cylindrique externe, sont en effet très proches de la valeur attendue (50 Ω) pour un coupleur pré-adapté. Les coefficients de réflexion respectifs obtenus démontrent une très bonne transmission (3 % et 2 %, respectivement). Les conditions opératoires des décharges produites par ces cathodes HF préadaptées seront précisées dans les chapitres 3 et 4 et, plus précisément, dans les sections dédiées à leurs caractérisations.

Du point de vue de l'évaluation des performances d'une cathode HF conçue et utilisée pour la production d'un plasma, les mesures au port d'entrée (S_{11} et Z_e) seraient largement suffisantes pour relever la puissance réfléchie et la puissance transmise à la décharge et/ou pour ajuster les paramètres opératoires afin d'optimiser le couplage onde-plasma. Toutefois, comme décrit dans la section 2.2.1, pour la conception de cathode HF par un protocole en plusieurs étapes, la connaissance de l'impédance plasma Z_p est nécessaire. Sa détermination est donc effectuée par une méthode qui associe l'approche numérique (détermination des paramètres intrinsèques Z_{ij}), l'approche expérimentale (mesure d'impédance à un port d'accès, Z_e) et analytique pour le calcul de Z_p (méthode de changement de plan d'impédance, équation 2.2).

Pour une cathode HF donnée (de Z_{ij} déterminés), la méthode de changement de plan d'impédance a été également utilisée afin de remonter à l'impédance de la décharge sous différentes conditions opératoires (géométrie de la cathode HF, pression, puissance et mélange de gaz) et d'aboutir ainsi à une caractérisation électrique aussi complète que possible des décharges étudiées (voir chapitre 3 et 4).

2.2.4 Auto-interférométrie micro-onde : Détermination de la densité électronique le long d'une colonne de plasma HF

La méthode d'auto-interférométrie est une technique de détermination du profil longitudinal de la densité d'une colonne de plasma à onde de surface à partir des caractéristiques de l'onde qui se développe aux interfaces plasma / diélectrique / air (cf. figure 1.11).

Cette méthode repose, d'une part, sur des mesures expérimentales menant au nombre d'onde longitudinal $k = \beta - j\alpha$ ($\alpha > 0$) et, plus précisément, aux coefficients reliés à la propagation (β) et l'atténuation (α) de l'onde de surface se propageant le long d'un diélectrique et, d'autre part, sur la théorie de propagation qui relie ces coefficients aux propriétés électriques des milieux concernés et, plus particulièrement, à la densité du plasma.

Comme précisé dans le chapitre 1 (section 1.3.2), l'onde de surface produit le plasma (par transfert d'énergie de l'onde au plasma) le long duquel l'onde peut se propager jusqu'à ce qu'elle perde entièrement son énergie (fin de colonne de plasma). A proximité du tube diélectrique, il est possible de prélever le long de la colonne un signal proportionnel au champ électrique dont la périodicité et l'atténuation servent à la détermination des coefficients de propagation et d'atténuation, respectivement. Pour cela, un dispositif expérimental comme celui présenté sur la figure 2.9 est utilisé, où le signal électrique est prélevé à l'aide d'un câble micro-coaxial dénudé relié à l'ARV.



Figure 2.9 Dispositif expérimental d'auto-interférométrie.

En chaque point d'abscisse z le long du tube, l'ARV fournit l'atténuation et le déphasage du signal mesuré par rapport au signal de référence du générateur. Les profils obtenus pour une décharge à onde de surface à basse pression sont donnés en exemple sur les figure 2.10 et figure 2.11.



Figure 2.10 Profil axial du déphasage du signal mesuré en chaque point d'abscisse *z* par rapport au signal du générateur. Conditions opératoires : 250 mTorr (Ar), $P_T = P_i - P_r = 17,5$ W appliqué en z = 0).



Figure 2.11 Profil axial de l'atténuation du signal mesuré en chaque point d'abscisse *z* normalisé au signal de référence du générateur. Conditions opératoires : 250 mTorr (Ar), $P_T = P_i - P_r = 17,5$ W appliqué en z = 0.

Le profil de déphasage mesuré (figure 2.10) est exploité pour la détermination du coefficient β correspondant aux points médians z_i et z_j de même phase, *i.e.*, séparés d'une longueur d'onde λ [38] :

$$\beta_{\left(\frac{z_j+z_i}{2}\right)} = \frac{2\pi}{\lambda_{\left(\frac{z_j+z_i}{2}\right)}} = \frac{2\pi}{z_j - z_i}$$
(2.3)

Un programme Python détermine, à l'aide de l'équation 2.3, le coefficient β de propagation en chaque point z en interpolant linéairement les points expérimentaux. Ces coefficients, étant calculés aux points

médians de même phase, ils ne peuvent donc pas être déterminés au début et à la fin de la colonne de plasma. Dans le cas où la décharge à onde de surface est courte, il est préférable de déterminer le coefficient de propagation en considérant les points séparés par des demi-longueurs d'onde $\lambda/2$. Cela étend le profil $\beta(z)$ mesuré, mais au détriment de sa résolution.

Pour déterminer le coefficient α , on utilise la courbe d'atténuation du signal mesuré le long de l'axe de la décharge (figure 2.11). En effet, il est démontré que pour une décharge à onde de surface, la puissance perdue par l'onde $\frac{dP(z)}{dz}$ sur une tranche comprise entre z et z + dz est proportionnelle à la puissance P(z) au point z [32] :

$$\frac{dP(z)}{dz} = 2\alpha P(z) \tag{2.4}$$

En faisant l'hypothèse que la puissance P(z) est proportionnelle au carré du signal mesuré, le coefficient α peut être alors déterminé en tout point z à l'aide de l'équation 2.4. Ce calcul a également été effectué avec un programme Python.

Les coefficients $\beta(z)$ et $\alpha(z)$ ainsi déterminés, sont ensuite introduits dans le système d'équations de Maxwell qui décrivent la propagation d'un champ HF dans une structure à 3 milieux de permittivités ε_p , ε_d et ε_a pour le plasma, le diélectrique et l'air, respectivement (annexe 4). La résolution de l'équation de dispersion :

$$F\left[\omega, k_p\left(\varepsilon_p(n, \nu)\right), k_d(\varepsilon_d), k_a(\varepsilon_a)\right] = 0$$
(2.5)

consiste à déterminer, en chaque point z, la permittivité du plasma $\varepsilon_p(z)$ et, ensuite (*cf.* équations 1.5 et 1.6), la densité du plasma n(z) pour une fréquence de collisions ν imposée par la pression du gaz $(\nu (s^{-1}) \approx 2.10^9 p \text{ (torr) [39]})$. Les résultats obtenus par cette méthode sont présentés dans les chapitres 3 et 4.

2.2.5 Interférométrie micro-ondes : Détermination de la densité électronique dans la région de la colonne positive d'un plasma DC

L'interférométrie micro-onde est une méthode de diagnostic des plasmas qui permet de déterminer de manière non invasive la densité électronique d'un volume considéré de décharge. Cette méthode repose

sur la mesure simultanée du déphasage φ et de l'atténuation η d'une onde électromagnétique HF de pulsation ω qui se propage sur une distance *dl* dans le plasma et une onde qui parcourt la même distance mais en l'absence de plasma. Dans une colonne cylindrique de plasma, la distance est celle parcourue en direction transversale, soit une distance égale au diamètre \emptyset de la décharge et la densité obtenue sera une moyenne sur cette distance.

A partir de l'équation 1.7 écrite pour le vide et le plasma, le déphasage et l'atténuation peuvent être déduits de la manière suivante [40,41] :

$$\varphi + j\eta = \int_{\emptyset} \left(k_0 - k_0 \sqrt{\varepsilon_p} \right) dl = \frac{2\pi}{\lambda_0} \int_{\emptyset} \left(1 - \sqrt{\varepsilon_p} \right) dl, \qquad (2.6)$$

où $k_0 = \omega/c = 2\pi/\lambda_0$ représente le nombre d'onde de propagation dans le vide, et ε_p la permittivité relative du plasma (*cf.* équation 1.6). La condition 1.10 de propagation de l'onde dans le plasma ($\omega^2 \gg \omega_p^2$), permet un développement en série de Taylor de l'expression précédente pour en arriver à :

$$\varphi + j\eta = \frac{2\pi}{\lambda_0} \frac{1}{2} \int_{\emptyset} \frac{\omega_p^2}{\omega^2} \left(\frac{\omega^2}{\omega^2 + \nu^2} + j \frac{\omega \nu}{\omega^2 + \nu^2} \right) dl.$$
(2.7)

En utilisant la densité critique n_c au-delà de laquelle l'onde ne peut plus se propager (*cf.* équation 1.9 qui donne $\frac{\omega_p^2}{\omega^2} = \frac{n}{n_c}$), on obtient :

$$\varphi + j\eta = \frac{2\pi}{\lambda_0} \frac{1}{2} \int_{\emptyset} \frac{n(l)}{n_c} \left(\frac{\omega^2}{\omega^2 + \nu^2} + j \frac{\omega \nu}{\omega^2 + \nu^2} \right) dl.$$
(2.8)

Par identification, et en considérant la fréquence de collisions constante, on obtient les relations qui mettent en correspondance le déphasage et l'atténuation avec la densité plasma (moyennée sur le diamètre de la décharge, $\int n(l)dl = n\emptyset$):

$$\varphi = \frac{\pi \varnothing}{\lambda_0} \frac{n}{n_c} \frac{\omega^2}{\omega^2 + \nu^2}$$
(2.9)

$$\eta = \frac{\pi \varnothing}{\lambda_0} \frac{n}{n_c} \frac{\omega v}{\omega^2 + v^2}$$
(2.10)

En combinant les deux équations, 2.9 et 2.10, on obtient finalement l'expression de la densité plasma en fonction des valeurs du déphasage et de l'atténuation relevées expérimentalement :

$$n = n_c \, \frac{\lambda_0}{\pi \varnothing} \varphi \, \left(1 + \frac{\eta^2}{\varphi^2} \right) \tag{2.11}$$

ou seulement en fonction du déphasage :

$$n \approx n_c \ \frac{\lambda_0}{\pi \varnothing} \varphi \tag{2.12}$$

lorsque l'effet de collisions peut être négligé. La fréquence de collisions devient un paramètre important uniquement si sa valeur est de l'ordre de la fréquence de l'onde. Pour l'interféromètre utilisé, la fréquence est de 26,5 GHz, ce qui donne une pulsation de $1,7.10^{11}$ rad s⁻¹. Ces valeurs sont atteintes dans des plasmas de haute pression (centaine de torrs), pressions plus importantes que celles utilisées dans nos expérimentations (1 à quelques torrs) pour lesquelles la fréquence de collisions *v* reste de l'ordre de quelques 10^9 Hz.

Le dispositif expérimental de la mesure de densité électronique par interférométrie micro-onde est présenté figure 2.12.



Figure 2.12 Schéma de la mesure de densité électronique par interférométrie micro-onde.

L'interféromètre est composé d'une unité émettrice et d'une unité réceptrice qui sont reliées à un contrôleur permettant à la fois d'afficher le déphasage et l'atténuation et de réaliser la calibration à vide (c'est-à-dire de référencer le signal obtenu en présence du plasma à celui mesuré en l'absence du plasma). Les valeurs affichées par le contrôleur peuvent alors être directement injectées dans l'équation 2.11 ou 2.12.

Pour déterminer le profil longitudinal de la densité, les unités émettrice et réceptrice doivent être déplacées le long de l'axe de la décharge, tout en gardant leur position relative fixe. Du fait de la sensibilité de la détection de phase de l'interféromètre de 0,1°, la mesure de la densité électronique ne peut être réalisée que pour des distances et des densités électroniques suffisamment élevées. Pour nos configurations, les profils de densité n'ont pu être déterminés que pour les tubes de lampe de diamètre $\emptyset = 14$ mm avec une valeur minimale de *n* de l'ordre de 10^{10} cm⁻³ (*cf.* chapitres 3 et 4). Afin de minimiser les effets dus à la réflexion de l'onde par le plasma d'une densité proche de la valeur critique ($n_c = 8,6 \times 10^{12}$ cm⁻³ pour la fréquence de l'interféromètre de 26,5 GHz) et, donc, de garantir la fiabilité des mesures, seules les valeurs expérimentales qui conduisent à des densités inférieures à 3×10^{12} cm⁻³ peuvent être retenues.

2.3 Spectroscopie d'émission optique

La spectroscopie d'émission optique (SEO) est une méthode de diagnostic non invasive dont l'application première est l'identification des espèces qui composent un plasma. Elle peut être également employée pour la détermination de la densité électronique par mesure de l'élargissement Stark [42], de la température électronique par ajustements de modèles collisionnels radiatifs [43] ou encore de la température associée à une population du plasma. Cette section présente le protocole utilisé pour la détermination des températures de différentes populations, selon la nature du gaz utilisé dans nos dispositifs.

Comme mentionné dans le chapitre 1 (section 1.2.1), les plasmas à deux températures sont, par définition, des systèmes hors équilibre thermodynamique à cause du nombre de collisions insuffisant entre les différents types d'espèces (électrons, ions, neutres du gaz) pour aboutir à une équipartition globale en énergie. Toutefois, si les interactions entre particules d'un même type sont suffisamment nombreuses, celles-ci peuvent arriver à l'équilibre décrit par la distribution Maxwell-Boltzmann des vitesses des particules et par la distribution Boltzmann pour la répartition de la densité de population des états excités de différentes espèces (atomes, molécules, ions) par rapport à celle de l'état fondamental. Ces distributions sont caractérisées par une température propre à chaque type de particules, sans que les particules d'un type soient nécessairement en équilibre avec les particules d'un autre type. Généralement, l'énergie cinétique de translation des électrons (qui sont entraînés par le champ électrique) est beaucoup plus grande que l'énergie cinétique de translation des espèces neutres du gaz : $T_g < T_e$. Outre le non-équilibre entre les différentes espèces (électrons, ions, neutres), les différents degrés de liberté (translation, rotation, vibration, excitation électronique) d'une molécule peuvent

également être hors d'équilibre, ce qui se traduit par l'inégalité des températures correspondantes : $T_g < T_{rot} < T_{vib} < T_{ex} < T_e$ (ou $T_g < T_{ex} < T_e$, pour un gaz atomique).

Les températures électronique (T_e) et du gaz (T_g) sont des paramètres importants car elles influencent fortement la chimie du plasma et, pour certaines applications où les surfaces sont sensibles à la chaleur, la connaissance de la température du gaz est indispensable. Les configurations de lampes et les équipements à notre disposition ne permettent pas une détermination directe de ces valeurs, mais leur évolution avec les conditions opératoires peut être observée à travers les températures obtenues par l'exploitation des spectres de raies atomiques ou de bandes vibrationnelles et de structure rotationnelle des molécules, c'est-à-dire : la température des niveaux électroniques excités T_{ex} (dans un plasma d'argon), et les températures rotationnelle T_{rot} et vibrationnelle T_{vib} (dans un plasma de mélange Ar/N₂ ou Ar/S₂). En l'absence d'équilibre entre les différentes populations ($T_{ex} < T_e$ et $T_g < T_{rot}$), ces températures peuvent être considérées tout du moins, comme marqueurs énergétiques des décharges étudiées.

En ce qui concerne l'acquisition des spectres d'émission optique, celle-ci est réalisée au moyen d'un spectromètre FHR1000 dont la gamme de fonctionnement s'étend de 200 à 1000 nm. Ce spectromètre possède un réseau de diffraction de haute résolution (1200 traits mm⁻¹) relié, soit à une caméra CCD, soit à un Photomultiplicateur (PM). La caméra CCD permet une acquisition rapide d'une bande spectrale large (environ 20 nm par acquisition) avec une résolution en longueur d'onde de 0,02 nm. Le PM (monochromateur) permet l'acquisition de spectres de plus haute résolution en longueur d'onde (0,001 nm), mais avec un temps d'acquisition plus élevé.

La transmission du réseau de diffraction (en réflexion) ainsi que des détecteurs (caméra CCD et PM) dépendent de la longueur d'onde et, pour comparer l'intensité relative de raies espacées de plusieurs centaines de nanomètres, il est nécessaire d'effectuer une calibration, c'est-à-dire de déterminer un coefficient de correction à appliquer aux spectres expérimentaux relevés pour différentes décharges. Celui-ci est déduit de la comparaison du spectre expérimental d'émission d'un corps noir (réponse du spectromètre à l'émission d'une lampe à incandescence, 100 W, 3300 K) avec le spectre théorique d'un corps noir à la même température (figure 2.13).



Figure 2.13 Spectres et coefficient de correction du spectromètre FHR 1000 en fonction de la longueur d'onde.

L'émission d'un corps noir à 3300 K est appropriée pour le domaine de 400 nm à 1000 nm et le coefficient de correction (également représenté sur la figure 2.13) est obtenu par le quotient des points de deux courbes normalisées. Comme l'émission du corps noir à 3300 K dans le domaine UV est relativement faible, la calibration en dessous de 400 nm est réalisée à l'aide d'un spectroradiomètre lui-même autocalibré en intensité.

2.3.1 Température d'excitation de l'argon.

En supposant l'équilibre de Boltzmann pour la population des niveaux électroniques excités, l'intensité I_{ul} de la lumière, émise lors de la transition d'un niveau supérieur u à un niveau inférieur l, est reliée à la température T_{ex} par l'équation 2.13 [44] :

$$I_{u \to l} = g_u A_{ul} \frac{hc}{\lambda_{ul}} \frac{n_l}{Z} e^{-\frac{E_u - E_l}{K_B T_{ex}}}$$
(2.13)

où : h, c et k_B sont la constante de Planck, la vitesse de la lumière et la constante de Boltzmann, respectivement ; A_{ul} et λ_{ul} représentent la probabilité (coefficient d'Einstein) et la longueur d'onde de la transition $u \rightarrow l$; g_u et E_u sont le poids statistique et l'énergie du niveau supérieur et, enfin, Z est la fonction de partition. Pour le cas où l désigne le niveau fondamental ($E_l = 0$), l'expression logarithmique de l'équation 2.13 : Chapitre 2. Méthodes et techniques expérimentales

$$ln\left(\frac{I_{u\to l}\lambda_{ul}}{g_u A_{ul}}\right) = -\frac{E_u}{K_B T_{ex}} + cste$$
(2.14)

est utilisée pour plusieurs raies d'un spectre atomique afin de tracer le diagramme de Boltzmann (figure 2.14) et d'en déduire la température d'excitation comme l'inverse de la pente (pente $\propto 1/T_{ex}$) de la droite d'ajustement des points expérimentaux. Les constantes spectroscopiques, utilisées pour une décharge d'argon [45], sont regroupées dans le tableau 2.2.

$\lambda_{ul} (nm)$	$g_u \times A_{ul} (s^{-1})$	E _u (eV)
404,44	$5 \times 3,3 \ 10^{5}$	14,69
415,89	$5 imes 1$,4 10^6	14,53
451,07	$1 \times 1,18 \ 10^{6}$	14,57
549,59	9 × 1,69 10 ⁶	15,33
603,21	$9 \times 2,46 \ 10^7$	15,31
667,73	$1 \times 2,36 \ 10^5$	13,47
696,54	$3 \times 6,4 \ 10^{6}$	13,32
706,72	$5 \times 3,8 \ 10^{6}$	13,30
727,29	$3 \times 1,83 \ 10^{6}$	13,33

Tableau 2.2 Transitions de l'argon choisies pour la détermination de la température d'excitation.



Figure 2.14 Diagramme de Boltzmann pour la détermination de la température d'excitation de l'argon d'une décharge à onde de surface. Conditions opératoires : 1 Torr.

Aux incertitudes de mesures près, les points obtenus suivent bien un tracé de Boltzmann et la population des niveaux supérieurs excités (E > 13 eV) peut être donc considérée à l'équilibre. La valeur extraite de la figure 2.14, $T_{ex} \sim 0.34 \text{ eV}$, est clairement inférieure à celle de la température électronique attendue pour un plasma d'argon à 1 Torr, qui est plus proche de 1 - 1,5 eV [46]. Toutefois, l'évolution de ces deux températures avec les conditions opératoires est généralement similaire [47] et, de ce fait, la température d'excitation sera utilisée dans notre étude comme un indicateur de la distribution spatiale de la température électronique le long des décharges et de son évolution avec les conditions opératoires (cf. chapitre 3), mais seulement en Ar pur. En effet, le recouvrement des raies de l'argon avec celles du système B-X du soufre S₂, ou du système second positif C³ Π_u – B³ Π_g de l'azote moléculaire N₂, empêche la détermination de la température d'excitation. Pour les décharges de mélange utilisées dans notre étude, Ar/N₂ et Ar/S₂, la spectroscopie d'émission optique a été utilisée pour déterminer la température rotationnelle et, le cas échéant, la température vibrationnelle.

2.3.2 Température rotationnelle

<u>Température rotationnelle d'un plasma de mélange Ar/N</u>₂. [48] La température rotationnelle des décharges contenant du diazote a été déterminée à l'aide d'ajustements de spectres synthétiques (construits en supposant que les niveaux rotationnels sont à l'équilibre de Boltzmann) aux spectres expérimentaux d'émission de l'azote moléculaire [49]. Nous avons choisi la bande vibrationnelle d'émission de la transition v' = 0 \rightarrow v''= 2 du 2^{ème} système positif d'azote moléculaire, C³ Π_u – B³ Π_g (376 – 381 nm). La méthode consiste à reproduire numériquement un spectre en indiquant la position des raies d'émission et en ajustant, par itérations successives, la température rotationnelle jusqu'à la correspondance avec le spectre expérimental. Les spectres synthétiques ont été obtenus à l'aide d'un code MATLAB développé par l'université de Nancy [50]. Un exemple d'ajustement d'un tel spectre synthétique, obtenu pour une température $T_{rot} = 511$ K, à un spectre de décharge à onde de surface Ar-N₂ est présenté figure 2.15.



Figure 2.15 Comparaison des spectres synthétique (à $T_{rot} = 511$ K) et expérimental d'une décharge hybride Ar-N₂. Conditions opératoires : 1 Torr, 28% N₂.

La température rotationnelle $N_2(C)$ est généralement acceptée comme une bonne mesure de la température du gaz, ce qui suppose que, d'une part, la population du niveau excité est à l'équilibre de Boltzmann et, d'autre part, l'équilibre rotation-translation (i.e., équilibre entre les molécules du niveau rotationnel et du niveau fondamental) est atteint : $T_{rot} = T_g$. Cette condition est satisfaite dans de nombreux cas de décharges, de compositions et de pressions différentes [48]. Par contre, les décharges de mélange Ar/N₂ (et Ar/O₂) à pression sub-atmosphérique font figure d'exception [48] à cause du peuplement du niveau N₂(C), non seulement par collisions électroniques $(e + N_2(X) \rightarrow e + N_2(C))$, mais aussi par transfert d'énergie d'atomes métastables aux molécules de diazote dans l'état fondamental $(Ar({}^{3}P_{2}) + N_{2}(X) \rightarrow N_{2}(C) + Ar)$. Ce mécanisme de surexcitation du niveau rotationnel peut mettre en cause l'équilibre même de la population de ce niveau. Toutefois, dans nos conditions expérimentales de faible densité de métastables $Ar({}^{3}P_{2})$ (d'un facteur de l'ordre de 10⁻⁶ par rapport à la densité de l'argon à l'état fondamental) [51], on peut supposer que l'équilibre du niveau rotationnel est préservé. En revanche, l'équilibre rotation-translation n'est pas confirmé [48]. En effet, l'augmentation de la température rotationnelle avec la concentration d'argon (de 0 à 45 % et pour des pressions de 250 mTorr à 5 Torr) dans le mélange Ar/N2 a été clairement observée dans nos expérimentations, et ce, à pression et puissance constantes. Si la température rotationnelle ne peut donc pas être assimilée à celle du gaz, les valeurs T_{rot} déterminées peuvent, cependant, servir de curseur de positionnement de la température du gaz : $T_g < T_{rot}$.

<u>Température Rotationnelle d'un plasma de mélange Ar/S_2 </u>. Dans le cas des décharges contenant du soufre, la température rotationnelle est celle associée à la molécule de S₂ et elle peut être déterminée à partir de la structure rotationnelle des bandes vibrationnelles. Cela suppose que la température dans le

dispositif est suffisante pour une dissociation importante des molécules S_8 en S_2 (> 159 °C) [52]. Dans le spectre d'émission des décharges étudiées, nous avons observé deux bandes isolées et avons utilisé celle de plus grande intensité, à savoir celle de la transition v'=8 \rightarrow v'=0 du système B³ Σ_u - X³ Σ_g (figure 2.16).



Figure 2.16 Spectre d'une décharge à onde de surface $Ar-S_2$ (en régime dynamique, $T_{rot} = 230^{\circ}C$) centré sur la transition B :8 \rightarrow X :0 pour la détermination de la température rotationnelle à partir de la largeur à mi-hauteur du profil (FWHM).

Pour la détermination de la température rotationnelle, nous nous sommes appuyés sur les travaux de Merchant et Andrews [53] qui consistent en la comparaison de la forme de bande observée expérimentalement (de structure rotationnelle non-résolue) aux résultats de simulation de spectres synthétiques pour, ensuite, en déduire des expressions empiriques qui relient la température rotationnelle à la largeur à mi-hauteur $\Delta\lambda_{FWHM}$. Pour le domaine de pression situé autour du Torr, l'expression est donnée par l'équation 2.15 [53] :

$$T_{rot}(K) = 752 \,\Delta\lambda_{FWHM}(nm) - 145$$
 (2.15)

qui conduit, dans l'exemple donné sur la figure 2.16, à une température rotationnelle de l'ordre de 500 K (soit environ $T_{rot} = 230$ °C).

Les travaux de la référence [53] reposent sur l'hypothèse d'équilibre thermique du niveau B :v' = 8, avec un peuplement de ce niveau par collisions directes entre les électrons et les molécules S₂ au niveau fondamental (en négligeant le peuplement par la dissociation de S_{n>2}), et d'équilibre translation-rotation. Cela revient à considérer que la température rotationnelle est représentative de la température du gaz.

Toutefois, comme pour l'azote, on admettra qu'au minimum cette température serait la limite haute de la température du gaz pour les décharges de mélange Ar/S₂.

2.3.3 Température vibrationnelle

Contrairement au mélange Ar/S₂, sur le spectre d'une décharge Ar/N₂ plusieurs bandes vibrationnelles sont isolées et, de ce fait, il est possible de déterminer la température vibrationnelle. L'intensité d'émission d'un niveau vibrationnel v' à un niveau inférieur v'' est reliée à la température vibrationnelle T_{vib} par [54] :

$$I(\nu' \to \nu'') \propto \frac{A_{\nu'\nu''}}{\lambda_{\nu'\nu''}} exp\left[-\frac{hc \ G(\nu')}{k_B T_{vib}}\right]$$
(2.16)

où $A_{\nu'\nu''}$ est la probabilité de la transition $\nu' \rightarrow \nu''$, et $G(\nu') = \sum_i \alpha^i \left(\nu' + \frac{1}{2}\right)^i$ le terme d'énergie vibrationnel (ou α^i sont les *i*^{ème} termes des constantes vibrationnelles). La température vibrationnelle peut être donc déduite à partir du diagramme de Boltzmann :

$$ln\left(\frac{I_{\nu'\to\nu''}\lambda_{\nu'\nu''}}{A_{\nu'\nu''}}\right) \propto -\frac{hc\ G(\nu')}{k_B T_{vib}} + cte \tag{2.17}$$

Dans le cas d'une décharge Ar/N₂, nous opérons en utilisant cinq transitions vibrationnelles du second système positif $N_2(C^3\Pi_u - B^3\Pi_g)$ (figure 2.17) et leurs probabilités de transitions présentées dans le tableau 2.3 [55].

$\lambda_{v'v''}$ (nm)	364,17	367,19	371,05	375,54	380,49
ν'	4	3	2	1	0
<i>v</i> ″	6	5	4	3	2
$A_{\nu'\nu''}(s^{-1})$	$1,02 \times 10^{6}$	$2,37 \times 10^{6}$	$4,05 \times 10^{6}$	$4,93 \times 10^{6}$	$3,54 \times 10^{6}$
$G(\nu')$ (cm ⁻¹)	12105	10400	8636	6817	4940

Tableau 2.3 Transitions vibrationnelles du second système positif $N_2(C^3\Pi_u - B^3\Pi_g)$ considérées pour la détermination de la température vibrationnelle et probabilités associées.



Figure 2.17 Spectre d'une décharge hybride Ar-N₂, centré sur les cinq transitions vibrationnelles du système $C^3\Pi_u - B^3\Pi_g$ considérées pour la détermination de la température vibrationnelle. Conditions opératoires : 1 Torr, 28% N₂.

Le diagramme de Boltzmann représenté sur la figure 2.18 conduit, comme attendu, à une température vibrationnelle supérieure à la température rotationnelle : $T_{vib} \approx 4900 \text{ K} > T_{rot} = 511 \text{ K}$ [48].



Figure 2.18 Diagramme de Boltzmann pour la détermination de la température vibrationnelle d'une décharge hybride Ar-N₂. Conditions opératoires : 1 Torr, 28% N₂.

Bien que T_{vib} ne donne pas d'indication sur la température du gaz, nous l'avons déterminée chaque fois quand cela a été possible (plasma de mélange contenant de l'azote) pour un suivi comparatif des deux températures lors de la modification des conditions opératoires (voir section 4.1.3).

2.4 Caractérisation de lampe

Les caractérisations radiométriques, photométriques et colorimétriques d'une lampe sont indispensables pour l'évaluation de ses propriétés, tant du point de vue énergétique, que du point de vue du confort visuel.

2.4.1 Spectroradiomètre

Un outil qui a largement été employé dans la caractérisation du rayonnement des décharges électriques est un spectroradiomètre SPECBOS 1211 UV. Il s'agit d'un spectromètre étalonné et autocalibré qui permet de mesurer la luminance spectrale énergétique (voir définition en annexe 1) d'une surface dont les limites sont indiquées préalablement à la mesure par un pointeur laser intégré à l'appareil. Une fois la mesure lancée, le laser s'éteint et la luminance de la surface est alors déterminée par le spectroradiomètre. La gamme spectrale du spectroradiomètre s'étend de 230 nm dans l'UV à 1000 nm dans l'IR. Cette large gamme spectrale nous permet de distinguer : le domaine UV entre 230 et 380 nm, le domaine Visible entre 380 et 750 nm, et enfin le domaine IR entre 750 et 1000 nm. Ces caractéristiques du spectroradiomètre SPECBOS 1211 UV – mesure étalonnée en luminance et large domaine spectral – sont adaptées à la caractérisation des lampes. *A contrario*, la résolution en longueur d'onde est médiocre (4,5 nm) et ne permettrait pas le contrôle en longueurs d'onde pour le diagnostic optique du plasma comme présenté dans la section 2.3.

A partir d'une mesure de luminance spectrale, le logiciel associé au spectroradiomètre détermine, par calcul, plusieurs grandeurs photométriques et colorimétriques qui caractérisent plus en détail la source considérée. Tout d'abord, par simple intégration sur les domaines de longueur d'onde, le logiciel calcule la luminance énergétique, dans l'UV, le Visible, et l'IR. Ensuite, par l'intermédiaire de la courbe de sensibilité spectrale de l'œil (voir annexe 1), le logiciel donne la luminance visuelle exprimée en cd.m⁻² ainsi que plusieurs grandeurs colorimétriques, définies plus en détail dans l'annexe 1 : les coordonnées *x*,*y* de la source de lumière dans le diagramme de chromaticité de la CIE, la température de couleur proximale de la source (CCT) en Kelvin, ainsi que son IRC (Indice de rendu des couleurs).

2.4.2 Rendements et efficacité lumineuse
<u>L'efficacité lumineuse</u> (η_l), exprimée en lmW⁻¹, renseigne sur l'efficacité d'une source à nous paraitre visuellement intense par unité de puissance consommée. Elle est la grandeur centrale de ce travail et son optimisation constitue un de ses objectifs principaux. Pour une lampe fluorescente, celle-ci est exprimée au moyen de différents rendements que nous exposons ci-après. On définit d'abord la <u>puissance électrique déposée dans la décharge</u> (P_E) comme la somme de la puissance HF transmise (P_T) et de la puissance DC, cette dernière étant définie par le produit I_dV_d du courant et de la tension de décharge. Bien entendu, si la décharge se limite à un plasma HF seul, la puissance DC est nulle.



Figure 2.19 Arbre de puissance représentant pour une lampe fluorescente le cheminement de la puissance électrique déposée au flux lumineux.

<u>Le rendement énergétique de décharge</u> noté (r_e) et exprimé en % se définit comme le rapport du flux énergétique de la source sur le domaine (230 – 1000 nm) sur sa puissance électrique déposée :

$$r_e = \frac{F_e}{P_E}.$$
(2.18)

Le rendement énergétique exprime l'efficacité de la décharge à produire un rayonnement sur l'ensemble du domaine (230 - 1000 nm) par unité de puissance déposée. Etant donné que l'on considère ici une lampe fluorescente, on introduit également un <u>rendement de conversion/transmission</u> noté (r_c) et exprimé en % qui se définit comme le rapport du flux énergétique de la source après fluorescence (230 – 1000 nm) sur son flux énergétique avant fluorescence

Chapitre 2. Méthodes et techniques expérimentales

$$r_c = \frac{F_e \text{ (après fluorescence)}}{F_e \text{ (avant fluorescence)}}.$$
(2.19)

Le rendement de conversion/transmission traduit l'efficacité d'un revêtement fluorescent à convertir l'émission UV de la décharge en émission visible et dans le même temps à simplement transmettre l'émission Visible et IR de la décharge vers l'extérieur. <u>Le flux lumineux</u> exprimé en lm correspond au flux énergétique de lampe corrélé à la visibilité humaine. Celui-ci est déterminé à l'aide de la courbe de la sensibilité de l'œil K_mV(λ) (voir annexe 1). Le rapport du flux lumineux et du flux énergétique (ou de la luminance visuelle et de la luminance énergétique) définit<u>l'efficacité lumineuse du rayonnement</u> notée r_r et exprimée en lm.W⁻¹:

$$r_r = \frac{F_v}{F_e} = \frac{L_v}{L_e} \tag{2.20}$$

L'efficacité lumineuse du rayonnement d'une source traduit l'efficacité de cette source à émettre dans un domaine spectral du visible où l'œil humain est le plus sensible.

Au final, <u>l'efficacité lumineuse</u> (η_i) s'exprime pour une lampe fluorescente comme le produit du rendement de décharge, du rendement de conversion et de l'efficacité lumineuse du rayonnement de la source considérée. Plus généralement, elle s'exprime aussi comme le rapport du flux lumineux de la source sur sa puissance électrique déposée.

$$\eta_l = r_e \; r_c \; r_r = \frac{F_v}{P_E} \tag{2.21}$$

Comme le montre implicitement l'équation 2.21, l'optimisation de l'efficacité lumineuse passe donc à la fois par l'optimisation du rendement énergétique de la décharge mais aussi par l'optimisation des performances du revêtement fluorescent.

2.4.3 Estimation du flux lumineux émis

Pour la mesure du flux, deux méthodes ont été considérées : La première méthode (approchée) repose sur l'hypothèse lambertienne de l'émission (voir annexe 1) et consiste à intégrer spatialement, le long du tube de décharge, la mesure de luminance fournie par le spectroradiomètre. La seconde méthode (intégratrice) nécessite l'emploi d'une sphère d'intégration. Elle est plus directe et ne nécessite pas d'hypothèse lambertienne. La méthode approchée utilise comme point de départ la mesure de luminance fournie par le spectroradiomètre SPECBOS 1211 UV (230-1000 nm).

Considérons le calcul du flux d'une lampe tubulaire de longueur l et de diamètre d. La première étape de cette méthode consiste à mesurer la luminance. Le spectroradiomètre est positionné perpendiculairement à l'axe de la lampe comme représenté sur la figure 2.20.



Figure 2.20 Dispositif expérimental pour la mesure de la luminance spectrale L_{λ} .

Le spectroradiomètre récolte la lumière émise perpendiculairement au tube, c'est-à-dire ayant franchi la paroi du tube (en quartz dans notre cas) en incidence normale (figure 2.20). Or dans le flux total, il faudrait considérer la lumière ayant franchi la paroi du tube dans toutes les directions. Pour tenir compte de cette différence, on utilise un coefficient de correction (*C*) déduit du rapport de la transmittance en incidence normale ($T(0^\circ)$) et de la transmittance diffuse hémisphérique (T(hémisphérique)) d'une plaque de quartz que l'on suppose non absorbante et d'indice de réfraction 1,5 pour toutes les longueurs d'onde :

$$C = \frac{T(h\acute{e}misph\acute{e}rique)}{T(0^{\circ})} = \frac{0.85}{0.92} = 0.92.$$
 (2.22)

En supposant l'émission uniforme sur la surface de la lampe, et de luminance constante dans toutes les directions (hypothèse lambertienne, voir annexe 1), le flux total émis par la lampe peut s'exprimer en fonction de la luminance mesurée par l'expression :

$$F = C \pi S L, \qquad (2.23)$$

où la surface d'émission de la lampe tubulaire est $S = \pi d l$. L'équation 2.23 reste valable que les grandeurs soient photométriques ou radiométriques, et qu'elles soient décomposées spectralement ou non. Dans le cas où l'émission de la lampe varie axialement, on réalise avec le spectroradiomètre N mesures $L(z_i)$ suffisamment rapprochées le long de son axe z. Le flux de la lampe s'exprime alors de la façon suivante :

$$F = 0.92 \pi^2 d l \frac{1}{N} \sum_{i=0}^{N} L(z_i).$$
(2.24)

Le flux lumineux déterminé à l'aide de la méthode approchée sur un tube fluorescent T8 neuf (36 W, 120 cm) atteint 3390 lm. Cette valeur est conforme à la valeur fournie par le fabriquant Sylvania de 3350 lm (-0% , +15%). On notera les tolérances importantes affichées pour une grandeur photométrique par le fabriquant.

La méthode intégratrice consiste à positionner la lampe à tester à l'intérieur d'une sphère qui « intègre » l'ensemble de la lumière émise pour en mesurer le flux (figure 2.21). Cette approche permet de s'affranchir de la dépendance angulaire de l'émission et prend également en compte les effets d'absorption et de diffusion de la lampe elle-même.

Concrètement, la sphère intégratrice est une enceinte fermée dont la surface intérieure est diffusante, blanche, à forte réflectance. On place au centre de la sphère la lampe à tester. Une petite ouverture dans la paroi de la sphère permet l'acquisition d'un spectre [56]. Deux autres lampes sont nécessaires :

- Une lampe étalon halogène qui sert de référence de mesure. Son flux est connu (fourni par le fabriquant) et est choisi pour être proche du flux de la lampe à tester.

- Une lampe auxiliaire, également halogène, de flux plus important, est utilisée pour déterminer l'auto-absorption du flux lumineux par la présence même à l'intérieur de la sphère de la lampe à tester.



Figure 2.21 Schéma du principe d'une sphère intégratrice. Les écrans permettent d'éviter que le rayonnement direct de la source au spectroradiomètre soit privilégié par rapport aux autres directions d'émission.

Les mesures, effectuées à largeur de fente et à temps d'intégration maintenues constantes, se déroulent en quatre étapes :

- Etape 1 : Mesure du spectre d'émission (D_e) de la lampe étalon, insérée seule dans la sphère.
- Etape 2 : Mesure du spectre (D_l) de la lampe à tester qui remplace la lampe étalon.
- Etape 3 : Mesure du spectre (A_e) de la lampe auxiliaire en l'absence de la lampe à tester.
- Etape 4 : Nouvelle mesure du spectre (*A*_{*l*}) de la lampe auxiliaire, mais en y ajoutant la lampe à tester éteinte.

Le flux de la lampe à tester F_{test} est déterminé par la relation :

$$F_{test} = \frac{D_l}{D_e} \frac{A_e}{A_l} F_e.$$
(2.25)

Cette méthode ne sera pas utilisée lorsqu'une partie importante de la lumière est émise dans l'UV. La première raison est liée à la faible émission UV des lampes à incandescence, étalon et auxiliaire, ce qui, en pratique, rend l'étalonnage impossible en dessous de 350 nm. La deuxième raison est liée à la fluorescence du revêtement de la sphère pour des rayonnements à des longueurs d'onde inférieurs à 300 nm provenant de la lampe à tester. Cette fluorescence conduirait à une surestimation de l'émission visible de la lampe. Pour ces deux raisons, les mesures ont été réalisées par cette méthode par sphère d'intégration uniquement sur les prototypes de lampe dont l'émission est majoritairement dans le visible, *i.e.* pour des tubes à décharge entourés par des films fluorescents chargés en luminophores.

La comparaison des résultats fournis par les approches spectrométrique et intégrative est présentée et discutée en détail dans la section 4.3.4.

Conclusion du Chapitre 2

L'objectif de ce chapitre a été de présenter les méthodes de caractérisation employées le long du travail conduit dans cette thèse pour l'étude des performances électromagnétiques, électriques, optiques et énergétiques de nos décharges.

Nous avons décrit les approches et le protocole opératoire qui nous ont conduits à la conception des cathodes, aussi bien planaire que cylindrique, optimisées en termes de transmission de puissance HF, avec une performance proche de 100%.

Nous avons également passé en revue les méthodes employées pour la détermination des différentes températures pour en conclure que les températures d'excitation et rotationnelle peuvent être considérées, à un facteur près, comme des indicateurs de la température électronique et de la température du gaz, respectivement.

Les notions relatives à la radiométrie et à la photométrie de lampe ont été brièvement rappelées. La méthode « approchée », basée sur l'utilisation d'un spectroradiomètre, permet de déterminer (avec l'hypothèse de source lumineuse lambertienne ou orthotrope), assez simplement et avec une précision satisfaisante, les flux énergétiques et lumineux d'une lampe. Cette méthode reste toutefois moins précise que la méthode « intégratrice » (sphère intégratrice) qui ne nécessite aucune approximation, mais qui est plus laborieuse à mettre en œuvre.

CHAPITRE 3. Etude des décharges en argon

Introduction du Chapitre 3

Ce chapitre présente l'étude des décharges produites dans un gaz inerte (argon) en utilisant les deux types génériques de cathode HF introduites dans les précédents chapitres, *i.e.*, planaire et cylindrique, avec pour principal objectif, l'indentification des géométries les plus favorables du point de vue de l'efficacité énergétique et, donc, les plus favorables pour l'élaboration d'un prototype de lampe fluorescente à gaz réactif.

Après une analyse succincte des performances en transmission d'une cathode HF planaire, la première section 3.1 de ce chapitre, porte essentiellement sur la comparaison d'une décharge à cathode HF fonctionnant en mode hybride (HF&DC) avec une décharge traditionnelle entretenue par une tension DC. Cette comparaison, effectuée en utilisant un dispositif de configuration dite optimisée, est présentée afin de ressortir les avantages que l'utilisation d'une cathode HF procure par rapport à une décharge DC.

Ensuite, dans la section 3.2, nous présentons l'étude effectuée de manière aussi exhaustive que possible sur la décharge hybride en configuration optimisée, dont le circuit électrique est dépourvu de résistance de ballast et d'adaptateur d'impédance, pour en déduire les performances électriques, électro-magnétiques et radiométriques de la décharge à une pression d'argon de référence, 1 Torr, et à des puissances HF de quelques watts (≤ 10 W).

La configuration planaire optimisée correspond à un dimensionnement du dispositif de décharge qui résulte d'une étude paramétrique effectuée en choisissant comme variables la géométrie de la cathode et la distance entre les électrodes, et ce, pour un tube de décharge choisi selon le standard T5 des lampes fluocompactes. Cette investigation paramétrique est présentée dans la section 3.3.

Enfin, la dernière section 3.4, est dédiée aux décharges à cathode HF à onde de surface cylindrique fonctionnant aussi bien en mode HF qu'en mode hybride (HF&DC). Elle décrit les deux structures considérées dans cette étude, à savoir, les tubes de décharge non-scellés (structure à double paroi) et tubes scellés (structure à un tube de décharge), ainsi que les performances qui en sont obtenues. Cette section présente également les paramètres électriques utilisés en appui à la caractérisation et à l'analyse de ce type de décharges.

3.1 Décharges à cathode HF planaire. Comparaison Décharge DC – Décharge planaire hybride (HF&DC).

Pour l'étude comparative des décharges entretenues par DC avec celles entretenues conjointement par HF&DC (décharges hybrides), nous avons utilisé une cathode de configuration planaire telle que représentée sur la figure 1.14-b du chapitre 1. Cette configuration est rappelée ici (figure 3.1) avec les dimensions regroupées et précisées dans le tableau 3.1. Les dimensions du tube de cathode correspondent à celles du diélectrique de passage des micro-ondes dont les diamètres sont délimités par les conducteurs intérieur (âme centrale, $\emptyset = 11$ mm) et extérieur (blindage, $\emptyset = 13$ mm). Le blindage s'étend jusqu'au tube de décharge et, donc, son diamètre extérieur indique celui du tube de décharge. Dans tout ce qui suit, l'épaisseur du tube de décharge est de 1 mm.



Figure 3.1 Schéma représentative de la Figure 1.14-b

Diamètres	Diamètre	Plan diélectrique/	Distance	Diamètre	Pression
Tube cathode	Tube décharge	Plan conducteurs	inter-électrodes	anode	argon
Ø = 11/13 mm	Ø = 14 mm	- 5 mm	$D_{ak} = 10,5 \text{ cm}$	Ø=12mm	1 Torr

Tableau 3.1 Dimensions de la cathode à configuration planaire et pression d'argon.

La cathode a été dimensionnée à l'aide de la simulation électromagnétique à deux ports, décrite dans le chapitre 2, pour obtenir un minimum de réflexion (*cf.* figure 2.3-b), soit une impédance de choix $Z_p(\Omega) = 1,7 + j 1,4$, dont la valeur correspond à celle déterminée au préalable pour une décharge HF&DC à $V_d = 60$ V (*cf.* figure 3.10 de la section 3.2.1). La différence entre le concept modélisé et la cathode mise en œuvre est au niveau du positionnement du tube de cathode par rapport au plan des deux conducteurs, *i.e.*, l'âme centrale et le blindage. Dans le cas présent, le tube de cathode est en retrait de

5 mm par rapport au plan des conducteurs et ce choix est justifié dans la section 3.3.2 consacrée au choix des paramètres opératoires (pression, géométrie électrodes, distance inter-électrodes).

Les performances électromagnétiques de cette configuration à cathode planaire ont été examinées en termes d'impédance Z_p , d'efficacité de transmission de la puissance HF du générateur jusqu'au plan terminal de l'applicateur (plan de cathode en contact avec la décharge) :

$$\eta_T = \frac{P_T}{P_i} = \frac{P_i - P_r}{P_i} \tag{3.1}$$

et d'efficacité de chauffage (facteur de puissance) :

$$\eta_a = \frac{P_a}{P_T} = \frac{R_p}{\sqrt{(R_p)^2 + (X_p)^2}} = \frac{R_p}{|Z_p|}.$$
(3.2)

où P_a représente la puissance active consommée pour le chauffage ohmique des électrons de la décharge. Le produit de ces deux rendements, η_a et η_T , :

$$\eta_{HF} = \eta_a \eta_T = \frac{P_a}{P_i} = \frac{R_p}{|Z_p|} \frac{P_i - P_r}{P_i}$$
(3.3)

donne le rendement global cathode/décharge dans le cas où toute la puissance transmise par la cathode est transmise (injectée) à la décharge. Toutefois, une partie non-négligeable de la puissance transmise par la cathode peut être perdue par rayonnement (jusqu'à 20% d'après la section 2.2.2), mais la fraction exacte est difficilement quantifiable par des mesures directes, raison pour laquelle, cette perte sera généralement négligée. Utiliser l'expression de l'équation (3.3) revient donc à surestimer le rendement de transmission à la décharge et par conséquence, le rendement total d'un pourcentage correspondant à celui des pertes par rayonnement.

Les variables de l'étude sont la pression de l'argon (0,5 à 10 Torr) et, selon la grandeur analysée, la puissance HF incidente P_i (1 à 10 W) ou transmise P_T (1 à 10 W). Ces rendements ont été évalués à partir des impédances, déterminées par la méthode de transposition de plan d'impédance (*cf.* section 2.2.3), et des puissances incidente P_i et réfléchie P_r , prélevées directement à l'aide d'un bolomètre (wattmètre).

Dans cette section, nous présentons les résultats de l'analyse des décharges obtenues par la cathode alimentée d'abord en HF (section 3.1.1), ensuite par la cathode alimentée successivement en DC et en HF&DC dans un circuit électrique comportant une résistance de ballast (section 3.1.2).

3.1.1 Décharge HF à cathode planaire sans adaptateur d'impédance

L'objectif principal de l'investigation de la décharge alimentée uniquement en HF est d'établir ultérieurement (section 3.1.2) l'influence de la présence d'un colonne positive sur la décharge HF et, plus particulièrement, sur l'efficacité de transmission et de couplage de l'onde HF.

Les caractéristiques électromagnétiques de la décharge HF, impédance et efficacité de transmission, sont présentées sur la figure 3.2 en fonction de la pression et sur la figure 3.3 en fonction de la puissance transmise.



Figure 3.2 Impédance et rendement de transmission pour une décharge à cathode planaire en fonction de la pression. Conditions opératoires : 1 Torr, $P_T = P_i - P_r = 5$ W, géométrie *cf.* tableau 3.1.

Comme il a été précisé dans les chapitres précédents, l'impédance d'une décharge dépend de la densité plasma et de la fréquence de collisions. A puissance transmise constante (5 W), ces deux paramètres varient peu dans la gamme de pressions explorée (1 à 10 Torr), ce qui explique la faible variation des grandeurs représentées sur la figure 3.2. On peut noter que le rendement de transmission est inférieur à 100 % à cause de la différence entre l'impédance déterminée expérimentalement pour la cathode alimentée uniquement en HF et la valeur de l'impédance choisie dans la simulation à 1,7 + j1,4 (Ω). Les mêmes grandeurs représentées sur la figure 3.3 en fonction de la puissance transmise et à pression constante (1 Torr) montrent une variation significative dans le domaine de faibles puissances où les valeurs de l'impédance augmente et l'efficacité de transmission de la cathode HF diminue en conséquence. Le caractère plus résistif de la décharge à des faibles puissances HF est naturellement dû à la diminution de la densité du plasma HF.



Figure 3.3 Impédance et rendement de transmission pour une décharge à cathode planaire en fonction de la puissance transmise. Conditions opératoires : 1 Torr, géométrie *cf.* tableau 3.1.

Pour conclure sur l'efficacité de la cathode HF, nous présentons sur la figure 3.4, les rendements de transmission η_T (équation (3.1)), de couplage η_a (équation (3.2)) et total η_{HF} (équation (3.3)) en fonction de la puissance incidente à une pression de 1 Torr.



Figure 3.4 Rendements de couplage, de transmission et total d'une décharge à cathode planaire en fonction de la puissance incidente P_i . Conditions opératoires : 1 Torr, géométrie *cf*. tableau 3.1.

Cette figure démontre que la cathode HF donnée en exemple dans cette section est performante en termes de transmission, puisqu'elle peut atteindre jusqu'à 90% pour des puissances incidentes supérieures à 4 W. Cette cathode peut donc être utilisée sans adaptateur d'impédance. Par contre, seule une partie de la puissance transmise est consommée pour le chauffage des électrons. En effet, pour 5 W de puissance transmise, seulement 4,25 W (~85%) sont utilisés pour le chauffage ohmique, d'où un rendement total η_{HF} de l'ordre de 80%. De plus, comme déjà précisé, le rendement global doit être revu à la baisse de 10 à 20 %, selon le pourcentage de puissance HF rayonnée hors plasma.

3.1.2 Décharge DC - Décharge planaire hybride (HF&DC) sans adaptateur d'impédance : différences et similitudes

Pour comparer une décharge entretenue alternativement dans un même dispositif en deux régimes différents, purement DC et hybride (HF&DC), il est impératif d'introduire une résistance de ballast dans le circuit électrique (*cf.* figure 2.1, $R_b = 23,8 \text{ k}\Omega$) afin de pouvoir appliquer des tensions DC élevées sans risque de passage de la décharge en régime d'arc. Pour cette comparaison, nous avons donc utilisé la même cathode de la section précédente (*cf.* tableau 3.1).

Les courbes courant-tension (I-V) de la décharge obtenue dans les deux régimes DC et HF&DC sont présentées sur la figure 3.5, et ce, pour plusieurs puissances HF transmises. La courbe correspondant au régime DC est libellée par ($P_T = 0$) et le courant de chaque décharge est représenté aussi bien en fonction de la tension de décharge V_d (symboles ouverts), que de la tension du générateur V_g (symboles pleins).



Figure 3.5 Caractéristiques I-V d'une décharge planaire hybride (HF&DC) (couleur) et d'une décharge DC (noir). Les symboles pleins représentent le courant en fonction de la tension de générateur (V_g) et les symboles ouverts le courant en fonction de la tension de décharge (V_d). Conditions opératoires : 1 Torr, géométrie selon tableau 3.1.

En régime purement DC (*i.e.*, $P_T = P_i - P_r = 0$), on peut remarquer les valeurs très élevées de la tension de décharge et très faibles du courant obtenu : plus de 500 V pour obtenir un courant inférieur à 5 mA. Cette tension est réduite d'un ordre de grandeur lorsque la décharge opère en régime hybride $(P_T = P_i - P_r \neq 0)$ et, quelle que soit la puissance HF appliquée à la cathode, on observe un comportement caractéristique d'une décharge luminescente normale (*cf.* figure 1.9), à savoir : faible variation de V_d alors que l'intensité du courant augmente par l'élévation de la tension V_g du générateur DC (à puissance HF constante). Cela signifie que V_d s'ajuste à une valeur correspondant au minimum requis pour l'entretien de la décharge et le surplus de tension par rapport à la tension du générateur $(V_g - V_d)$ se retrouve aux bornes de la résistance de ballast : $I_d R_b = V_g - V_d$ (équation 2.1).

L'augmentation de la puissance HF permet, naturellement, l'intensification du courant de la décharge avec pour conséquence la diminution légère de la tension V_d de maintien de la décharge. En revanche, à puissance HF donnée, l'augmentation de la tension de décharge par le renforcement de la tension du générateur a un effet contraire sur le courant, comme il peut être constaté dans l'exemple présenté sur la figure 3.6 pour une puissance HF de 5 W. En effet, le courant enregistre une diminution rapide, de ~7,5 mA à ~3 mA avant une ré-augmentation produite au-delà de ~400 V. Cela peut être expliqué par la hausse du potentiel dans la gaine cathodique qui accélère suffisamment les ions (puisés du plasma HF) vers la cathode pour en produire des électrons secondaires et en générer ainsi un plasma par ce mécanisme propre aux décharges DC. Le plasma de cathode (ou plasma de lueur négative) est alors conjointement produit par la puissance HF et par la chute de tension DC, ce deuxième type de production de plasma (DC) se faisant au détriment du premier (HF). En effet, les ions qui produisent les électrons secondaires sont extraits du plasma HF, ce qui constitue une perte en espèces chargées pour celui-ci et cette perte n'est malheureusement pas compensée par la production d'espèces chargées via les électrons secondaires. Par conséquent, l'augmentation de la tension V_g emmène à une transition de la décharge hybride à une décharge dont les caractéristiques s'approchent de celles d'une décharge purement DC lorsque la tension appliquée, et implicitement la tension de décharge, sont supérieures à ~400 V. Dans ce régime essentiellement DC, le bénéfice de la HF devient clairement négligeable et le courant commence à réaugmenter avec la tension, mais reste inférieur aux valeurs obtenues en régime gouverné par le champ HF.



Figure 3.6 Caractéristiques I-V d'une décharge planaire hybride HF&DC (bleu) et d'une décharge DC (noir). Les symboles pleins représentent le courant en fonction de la tension de générateur et les symboles creux, les courants en fonction de la tension de décharge. Conditions opératoires : 1 Torr, $P_T = P_i - P_r = 5$ W, géométrie *cf*. tableau 3.1.



Figure 3.7 Photo de la décharge planaire hybride (HF&DC) pour différentes tensions de décharges. Conditions opératoires : 1 Torr, $P_T = P_i - P_r = 5$ W, géométrie *cf*. tableau 3.1.

La transition de la décharge du régime HF&DC au régime DC peut être également observée sur les images de la figure 3.7 qui montrent, pour des tensions supérieures à ~400 V, un changement saisissable au niveau de la couleur du plasma de lueur négative (LN). Cela est la signature de la présence d'atomes métalliques pulvérisés de la cathode, mais aussi de celle des électrons secondaires de forte énergie. Bien évidemment, cette transition est accompagnée d'une augmentation concomitante de la longueur z_{ESF} de l'espace sombre de Faraday (ESF) en accord avec la relation de dépendance de cet espace avec la tension, la densité de courant de la décharge et la pression [57] :

$$z_{ESF} \propto \frac{pV_d^{3/2}}{J_d} \tag{3.4}$$

Dans le régime hybride, *i.e.*, le régime de décharge où le plasma de lueur négative est essentiellement produit par le champ HF (production d'électrons secondaires négligeable), l'ESF est naturellement réduit par rapport à celui d'une décharge DC, en raison de plus forts courants et de plus faibles tensions de décharge.

Les images de la figure 3.7 montrent également une structuration spatiale de la décharge hybride similaire à celle d'une décharge DC (*cf.* figure 1.10), dans le sens où le plasma de lueur négative (LN) et celui de colonne positive (CP) sont reliés par un espace sombre (ESF). Cette similitude structurelle est aussi mise en évidence par les courbes de distribution longitudinale du potentiel et du champ électrique présentées sur la figure 3.8. On note que ces valeurs ont été relevées pour une décharge hybride avec une cathode de configuration planaire, mais de dimensions adaptées à un tube de décharge qui a été aménagé pour pouvoir déplacer la sonde de mesure au long du tube. Du fait de ces changements dimensionnels, les valeurs du potentiel et du champ diffèrent dans l'absolu de celles qui auraient été obtenues pour la géométrie investiguée dans cette section, mais l'allure des courbes est la même.



Figure 3.8 Profil axial du potentiel et du champ électrique de la décharge planaire hybride (HF&DC). Conditions opératoires : 1 Torr, $P_T = P_i - P_r = 15$ W, géométrie : diamètres du tube de cathode $\emptyset = 6/16$ mm, diamètre du tube de décharge $\emptyset = 32$ mm, $D_{ak} = 20$ cm.

La figure 3.8 montre bien que la chute de potentiel au niveau de la cathode est de seulement quelques dizaines de volts contre les centaines de volts généralement mesurées dans les décharges DC. Comme attendu pour une décharge luminescente, le champ électrique est constant et de faible valeur dans la CP (~1 Vcm⁻¹ dans cet exemple), puisque celui-ci est gouverné par le plasma et s'ajuste pour compenser les pertes de charges aux parois (voir section 1.2.2).

Les résultats expérimentaux présentés dans cette section mettent en lumière les similitudes et les différences entre les décharges opérant dans les deux régimes DC et hybride (HF&DC). La différence majeure réside dans la réduction drastique de la tension dans la zone cathodique (un ordre de grandeur par rapport au régime DC) et donc de l'énergie de bombardement ionique de la cathode. Cela présente un avantage direct et considérable au niveau de la cathode : réduction de la pulvérisation et de la température de surface. De plus, l'émission d'électrons secondaires n'est plus une condition sine qua non pour l'entretien de la décharge hybride et les faibles tensions permettent d'opérer avec un circuit dépourvu de résistance de ballast et de piloter ainsi la décharge par une tension $V_d = V_g$ imposée directement par l'opérateur et non pas par la décharge elle-même via le ballast.

Un bilan des puissances, établi à titre d'exemple pour un cas particulier tiré de la figure 3.5, montre que la puissance DC consommée pour l'entretien de la décharge en régime hybride (HF&DC) est de ~0,23 W ($I_d = 4,5$ mA, $V_d = 50$ V, $P_T = 3$ W de puissance HF transmise) alors que pour l'obtention du même courant en régime DC, la puissance DC totale consommée est de ~2,7 W

 $(I_d = 4,5 \text{ mA}, V_g = 600 \text{ V})$ dont ~0,5 W (soit ~19 %) sont dissipés sur le ballast $(I_d = 4,5 \text{ mA}, R_b = 23,8 \text{ k}\Omega)$. Il y a donc un gain en puissance d'un ordre de grandeur.

3.2 Etude des performances électriques, électromagnétiques et radiométriques d'une décharge hybride (HF&DC) à cathode planaire en configuration dite optimisée

Cette section reprend l'étude de la précédente section, dans les mêmes conditions opératoires (tableau 3.1 emporté de la section précédente) pour en déterminer, d'une part, les performances électriques et électromagnétiques du dispositif en l'absence de résistance de ballast (section 3.2.1) et, d'autre part, les caractéristiques électriques et radiométriques du plasma ainsi obtenu (section 3.2.2).

Diamètres	Diamètre	Plan diélectrique/	diélectrique/ Distance		Pression
Tube cathode	Tube décharge	Plan conducteurs	inter-électrodes	anode	argon
Ø = 11/13 mm	Ø = 14 mm	- 5 mm	$D_{ak} = 10,5 \text{ cm}$	Ø=12mm	1 Torr

Tableau 3.1 Dimensions de la cathode à configuration planaire.

3.2.1 Performances électriques et électromagnétiques

Le premier objectif est donc d'examiner les performances électriques et électromagnétiques de la décharge hybride lorsque la tension V_d est imposée à la décharge par l'opérateur ($V_d = V_g$) et non plus par la décharge elle-même via la résistance de ballast ($V_d = V_g - I_d R_b$). Pour ce faire, l'évolution du courant de la décharge hybride est analysée en parallèle avec celles de l'impédance déterminée dans le plan de la cathode HF (*cf.* section 2.2.3) et des rendements qui prennent en compte uniquement des grandeurs HF (P_i , P_r et P_a). Cette analyse est d'abord effectuée à puissance HF transmise constante, soit $P_T = P_i - P_r = 5$ W (figure 3.9) puis, à puissance incidente constante $P_i = 5$ W (figure 3.10).



Figure 3.9 a) Caractéristique I-V ; b) Rendement de couplage et de transmission et ; c) Impédance d'une décharge planaire hybride (HF&DC). Conditions opératoires : 1 Torr, $P_T = P_i - P_r = 5$ W, géométrie *cf.* tableau 3.1.

La figure 3.9-a montre une augmentation du courant avec la tension V_d imposée à la décharge pour atteindre un maximum de 45 mA autour de 60 ± 5 V. Contrairement au cas où la décharge est pilotée via la résistance de ballast (figure 3.6), la décroissance du courant qui suit dans le cas présent se produit progressivement.

La figure 3.9-b représente les rendements de transmission et de couplage, et elle démontre qu'à l'application de la composante DC ($V_d = 50$ V), l'impact en termes de transmission de puissance par la cathode HF est faible. Par contre, dès l'application de la tension DC, la répartition de la puissance dans la décharge est différente, à l'image du changement produit au niveau des composantes résistive (R_p) et réactive (X_p) de l'impédance de la décharge mesurée dans le plan de la cathode (*cf.* figure 3.9-c). De ce fait, le couplage subit une diminution conséquente par rapport à celui obtenu en l'absence de la composante DC : η_a diminue de 85% à 50%.

L'augmentation de la tension V_d conduit, dans un premier temps, à une amélioration du couplage de 50 à 80%, ce qui justifie l'augmentation du courant et se traduit par un renforcement de la colonne positive (*i.e.*, augmentation de la densité électronique, comme il sera montré dans la section 3.2.2). Ce comportement est observé jusqu'à des tensions ~60-65 V, au-delà desquelles les variations significatives d'impédance (*e.g.*, évolution de 2 à 6 Ω de la réactance) conduisent à la diminution du couplage de 80

% à 30% et, par conséquent, du courant de décharge. On peut noter que, dans la gamme de valeurs de hausse du couplage et du courant, l'augmentation simultanée de la résistance R_p est la conséquence d'une expansion spatiale du plasma HF (plasma de cathode ou plasma de LN) et non pas d'une diminution en densité du plasma. Il est ici également utile d'expliquer la variation du rendement de transmission avec V_d , alors que la puissance transmise $P_T = P_i - P_r$ est constante. En effet, la variation de tension V_d augmente la réflexion de l'onde, ce qui impose un ajustement à la hausse de la puissance incidente P_i du générateur HF pour en assurer la différence $P_i - P_r = P_T$ constante.

Les mêmes tendances sont obtenues pour ces grandeurs (courant et rendements) lorsque la puissance incidente est maintenue constante, comme il peut être observé sur la figure 3.10 ($P_i = 5$ W).



Figure 3.10 a) Caractéristique I-V de la décharge planaire hybride (HF&DC) ; b) Rendements de couplage et de transmission de la décharge planaire hybride (HF&DC) ; c) Impédance de la décharge planaire hybride (HF&DC). Conditions opératoires : 1 Torr, $P_i = 5$ W, géométrie *cf*. tableau 3.1.

Une synthèse des performances de la cathode et de la décharge en fonction de la tension V_d est présentée sur la figure 3.11-a à $P_T = P_i - P_r = 5$ W et sur la figure 3.11-b à $P_i = 5$ W. Ces figures retracent aussi

bien le courant de la décharge I_d que les puissances impliquées, à savoir : P_i - incidente, P_T - transmise, P_a - active de chauffage des électrons par le champ HF, $P_{DC} = I_d V_d$ - puissance DC et, en fin, la somme :

$$P_{\Omega} = P_a + P_{DC} \tag{3.5}$$

qui représente la puissance ohmique totale dissipée dans la décharge.



Figure 3.11 Bilan des puissances de la décharge planaire hybride (HF&DC) : a) $P_T = P_i - P_r = 5$ W ; b) $P_i = 5$ W. Conditions opératoires *cf*. tableau 3.1.

Comme attendu, pour les deux cas présentés sur la figure 3.11, l'allure des courbes P_a et P_{DC} est similaire, avec un maximum de courant correspondant au maximum de puissance ohmique. L'application d'une tension continue affecte le plasma de lueur négative, et ce, d'autant plus que le potentiel V_d augmente. Cette influence se traduit par la modification de la répartition des puissances active et réactive, due à la variation de l'impédance dans le circuit électrique. Cette dernière pourrait être expliquée à l'aide de la représentation de l'impédance $R_p + jX_p$ mesurée dans le plan de la cathode par un circuit équivalent simplifié (figure 3.12-a) comportant l'impédance du plasma HF, R_p +j X_p à V_d = 0, en supposant que celle-ci varie faiblement avec V_d , la résistance R_{DC} et la réactance de la gaine X_g qui ne peut plus être négligée lorsque $V_d \neq 0$. Les différentes composantes mesurées $(R_p, X_p, R_{DC} = V_d/I_d)$ ou déterminées du modèle électrique (X_g) , sont représentées sur la figure 3.12-b (à $P_i = 5$ W) où on peut noter une résistance R_{DC} de trois ordres de grandeur supérieure à R_p . Sans détailler le calcul, le circuit électrique permet de comprendre aisément que la valeur de la résistance équivalente R_p à $V_d \neq 0$ est déterminée par la valeur la plus faible (celle du plasma HF, R_p à $V_d = 0$), alors que la réactance X_p est imposée par celle de la gaine, puisque X_p suit la même évolution que X_g . Il apparaît évident que ce modèle simpliste ne peut fournir qu'un ordre de grandeurs, mais il reproduit assez bien les variations observées expérimentalement.



Figure 3.12 a) Circuit électrique équivalent la décharge planaire hybride (HF&DC) ;
b) Comparaison de l'évolution de l'impédance mesurée et de l'impédance du circuit électrique équivalent de la décharge planaire hybride (HF&DC).

Les cas traités ci-avant ($P_i - P_r = 5$ W et $P_i = 5$ W) montrent que le courant de décharge est toutefois limité à 45 mA et, dans les conditions géométriques choisies et à pression donnée, celui-ci ne peut être davantage augmenté que par le biais de la puissance HF. En effet, la figure 3.13-a indique, pour différentes puissances transmises, une même évolution du courant avec la tension de décharge, dont le maximum est reporté sur la figure 3.13-b et représenté en fonction de la puissance transmise à la décharge.



Figure 3.13 a) Caractéristiques I-V de la décharge planaire hybride (HF&DC) pour différentes puissances transmises ; b) Courant de décharge maximal en fonction de la puissance transmise $P_T = P_i - P_r$. Conditions opératoires *cf*. tableau 3.1.

Pour des puissances HF supérieures au watt, l'évolution du courant de la décharge HF&DC (*cf.* figure 3.9, figure 3.10 et figure 3.13) est similaire et enregistre un maximum observé autour d'une même valeur de tension $V_d (I_{d-max}) \sim 60$ V, lorsque la géométrie et la pression sont maintenues constantes. Ce constat suggère qu'aux basses tensions, $V_d \leq V_d (I_{d-max})$, le mécanisme de production par des électrons secondaires est mineur et que cette décharge est essentiellement gouvernée par le plasma HF de cathode. Ceci est aussi confirmé par la figure 1.13 qui montre une variation linéaire du maximum de courant avec la puissance HF [13].

3.2.2 Caractéristiques électriques et radiométriques du plasma.

La décharge a été également caractérisée par spectroscopie d'émission optique et par interférométrie micro-ondes pour en déterminer la température d'excitation de l'argon par collisions électroniques (*cf.* section 2.3.1), la luminance spectrale (*cf.* section 2.4.1 et annexe 1), ainsi que la densité électronique le long du tube de décharge (*cf.* section 2.2.5). Le profil longitudinal de ces grandeurs est tracé sur les figures 3.14 à 3.16 pour une décharge d'argon à 1 Torr, entretenue à $P_T = P_i - P_r = 5$ W (*cf.* conditions de la figure 3.9 et à $V_d = 60$ V, c'est-à-dire à une tension assurant un courant de décharge proche de son maximum.



Figure 3.14 Profil axial de la température d'excitation d'une décharge planaire hybride (HF&DC). Conditions opératoires : 1 Torr, $P_T = P_i - P_r = 5$ W, $V_d = 60$ V, $I_d = 44$ mA et géométrie *cf*. tableau 3.1.

D'après la littérature [58,28], la température T_e électronique varie de manière significative le long d'une décharge DC, avec des différences d'au moins un ordre de grandeur entre les valeurs mesurées dans la LN (coté cathode) et celles mesurées dans la CP. La température électronique dans la LN est beaucoup

plus élevée à cause des électrons secondaires accélérés par la cathode à de très fortes énergies (> centaine d'eV) et renvoyés vers l'électrode opposée. En participant à la production du plasma de LN, ces électrons sont thermalisés et, par conséquent, leur température diminue drastiquement dans la LN (coté ESF) et dans l'ESF. Une légère augmentation en température est ensuite enregistrée dans la CP puisque celle-ci est imposée par les pertes aux parois, ce qui conduit (comme précisé dans la section 1.2.2, paragraphe Décharge luminescente) à la rehausse du champ électrique pour que l'équilibre de la décharge soit assuré. Comme la température T_{ex} d'excitation des neutres (argon) est un indicateur de la température T_e électronique, les profils de ces deux grandeurs doivent être sensiblement les mêmes, autrement dit, T_{ex} suit les mêmes variations d'une région à une autre que T_{e} . Toutefois, la figure 3.14 montre que, pour une décharge hybride, la température d'excitation varie relativement peu le long de l'axe, aucun écart notable (ordre de grandeur) n'étant observé entre les zones du plasma HF de cathode (ou plasma de LN) et du plasma de CP. Cela est expliqué par la différence considérable entre la chute de potentiel au niveau de la cathode d'une décharge HF&DC (dizaine de volts, cf. figure 3.8) et d'une décharge purement DC (centaine de volts), autrement dit par l'absence d'électrons secondaires de haute énergie dans le plasma HF. On note que dans l'ESF (compris entre ~0,5 et ~1 cm sur la figure 3.14), la température Tex d'excitation n'a pu être déterminée à cause de la très faible émission lumineuse dans cet espace, ce qui rend la méthode utilisée (diagramme de Boltzmann) imprécise.

La figure 3.14 montre donc que, dans une décharge hybride, il n'y a pas de différence énergétique notable entre la LN et la CP (exceptée l'ESF qui est nécessairement une zone plus froide). En revanche, comme dans les décharges DC [28,59], ces deux zones sont très différentes en termes de densité électronique, ce qui est montré sur la figure 3.15. Il faut noter que les mesures de densité ont été effectuées sur une distance inférieure à la distance inter-électrodes en raison de l'impossibilité de réaliser des mesures de déphasage dans la proximité des électrodes métalliques.

Le profil observé sur la figure 3.15, avec une densité très élevée au niveau du plasma de LN par rapport à la densité dans la CP, est très important pour l'application à l'éclairage, puisque, la lumière émise est directement liée à la densité des états radiatifs produits par collisions électrons-neutres et, donc, à la densité et à la température électronique. En considérant la faible variation de la température d'excitation (figure 3.14), l'intensité lumineuse (voir l'image associée à la figure 3.15) de la décharge suit plutôt le profil de la densité électronique. Bien évidemment, cela se répercute sur la luminance de la décharge, comme il en résulte de la figure 3.16 qui représente la luminance intégrée par domaine spectral : UV (230 - 380 nm), Visible (380 - 750 nm) et IR (750 - 1000 nm). Etant donné que l'argon rayonne essentiellement dans le domaine infra-rouge (*cf.* figure 3.16), la contribution majoritaire à la luminance intégrée sur tout le domaine (de 230 à 1000 nm) est celle de l'infra-rouge. La figure 3.16 montre donc que l'émission de la décharge hybride est non uniforme longitudinalement ce qui est, malheureusement, défavorable à l'application visée.



Figure 3.15 Profil axial de la densité électronique de la décharge planaire hybride (HF&DC). Conditions opératoires : 1 Torr, $P_T = P_i - P_r = 5$ W, $V_d = 60$ V, $I_d = 44$ mA et géométrie *cf*. tableau 3.1.



Figure 3.16 Profil axial de luminance énergétique intégrée sur les domaines UV, Visible et IR, pour la décharge planaire hybride (HF&DC). Conditions opératoires : 1 Torr, $P_T = P_i - P_r = 5$ W, $V_d = 60$ V, $I_d = 44$ mA et géométrie *cf*. tableau 3.1.



Figure 3.17 Flux spectrale de la décharge planaire hybride (HF&DC). Conditions opératoires : 1 Torr, $P_T = P_i - P_r = 5$ W, $V_d = 60$ V, $I_d = 44$ mA et géométrie *cf.* tableau 3.1.

Pour revenir à la densité électronique, on peut noter que les valeurs obtenues au niveau de la colonne positive de la décharge hybride, soit 10¹⁰ cm⁻³, sont très proches des valeurs habituellement obtenues dans une décharge DC d'argon, à la même pression et pour les mêmes courants [60].

Il est largement connu que dans la colonne positive, le courant est majoritairement porté par les électrons [28] :

$$I_d = en\mu_e ES \tag{3.5}$$

où *n* représente la densité du plasma et *e*, μ_e , *E*, *S* représentent, dans l'ordre, la charge élémentaire, la mobilité électronique, le champ électrique dans la CP et la section transversale de la décharge. Dans la mesure où le produit des trois derniers termes est constant (ce qui est le cas à géométrie et pression constantes), la densité plasma varie linéairement avec le courant, ce qui est confirmé par la figure 3.18.



Figure 3.18 Densité électronique moyenne du plasma de colonne positive en fonction du courant de décharge. Conditions opératoires : 1 Torr, $P_T = P_i - P_r = 5$ W, $V_d \sim 60$ V et géométrie *cf.* tableau 3.1.

On précise que, pour faciliter l'expérimentation, les mesures de densité dans la CP en fonction du courant de décharge ont été effectuées avec une résistance de ballast insérée dans le circuit. De ce fait, l'augmentation du courant de décharge a été ici obtenue via le générateur DC, avec une tension de décharge V_d (~ 60 V) s'ajustant à la valeur minimale requise pour l'entretien de la décharge (*cf.* section 3.1.2). L'augmentation du courant de décharge traduit donc un renforcement de la CP en termes de densité électronique et, par conséquent, de production de photons.

3.3 Retour sur le choix des conditions opératoires : Etude paramétrique des décharges HF&DC de cathode en configuration planaire

L'étude paramétrique présentée dans ce qui suit, vise à justifier les conditions opératoires (*cf.* tableau 3.1) utilisées dans la section précédente, dédiée à l'investigation des performances électriques, électromagnétiques et radiométriques de la décharge hybride. Le critère du choix de la configuration optimisée retenue dans la section 3.2 a été celui d'un maximum de courant I_d et, pour y parvenir, nous avons mené au préalable une étude exploratoire en choisissant les variables suivantes : 1) le diamètre de cathode/tube de décharge ; 2) le positionnement du tube de cathode par rapport au plan des conducteurs ; 3) la distance inter-électrodes et 4) la pression.

Cette section présente donc l'influence de chacun de ces paramètres sur la caractéristique I-V des décharges ainsi obtenues et, le cas échéant, un bilan énergétique établi pour le couple de valeurs (I_{d-max} , V_d). A titre indicatif, ce bilan est comparé à celui d'une décharge HF sans polarisation de la cathode ($V_d = 0$).

3.3.1 Dimensionnement des tubes de cathode et de décharge.

Pour l'élaboration de notre prototype de lampe, nous avons choisi de nous rapprocher des dimensions typiques des lampes fluocompactes de la catégorie standard T5, qui correspond à un diamètre de décharge de Ø14 mm. Le premier paramètre que nous avons choisi d'explorer est celui du diamètre du tube de cathode, c'est-à-dire du diélectrique de passage des micro-ondes. La pression de travail a été fixée à 1 Torr et ce choix est ultérieurement justifié, dans la section 3.3.4. Les conditions opératoires ainsi que la géométrie de la décharge sont rappelées dans le tableau 3.2. Toutes les valeurs sont identiques à celles du tableau 3.1 à l'exception du tube de cathode qui est la variable de l'étude.

Diamètres	Diamètre	Plan diélectrique/	Distance	Diamètre	Pression	P_T
Tube	Tube	Plan conducteurs	inter-	anode	argon	
cathode	décharge		électrodes			
Ø = variable	Ø = 14 mm	z = 0	$D_{ak} = 10,5 \text{ cm}$	Ø = 12	1 Torr	5 W
de l'étude				mm		

Tableau 3.2 Conditions opératoires et géométrie de la décharge planaire hybride (HF&DC).

Quatre cathodes HF ont été testées et correspondent donc à 4 différents diamètres de tube de cathode pour un tube de décharge (de lampe) maintenu constant, soit Ø14 mm. Les courants maximaux de décharge et les densités de courants correspondantes, obtenus avec chacune de ces cathodes HF sont présentés dans le tableau 3.3.

Dénomination de la cathode	Diamètre interne et externe du tube de cathode	I _{d-max}	J
CHF 1	Ø7/9 mm	16 mA	14,1 mA cm ⁻²
CHF 2	Ø 9/11 mm	17,5 mA	15,5 mA cm ⁻²
CHF 3	Ø 10/12 mm	22,8 mA	20,17 mA cm ⁻²
CHF 4	Ø 11/13 mm	31,1 mA	27,5 mA cm ⁻²

 Tableau 3.3 Courants maximaux de décharge et densités de courant correspondantes obtenus avec différentes cathodes HF. Conditions opératoires *cf.* tableau 3.2.

Le tableau 3.3, montre que les courants augmentent avec les diamètres du tube de cathode. Bien entendu, l'augmentation de ces diamètres entraîne l'amincissement du conducteur extérieur (blindage) et, par voie de conséquence, le rapprochement des deux diélectriques : de passage des micro-ondes et du tube de décharge. Du point de vue des propriétés diélectriques, ce rapprochement réduit la discontinuité entre les deux tubes et favorise la propagation de l'onde de surface sur les parois du tube de décharge (voir figure 1.11). La décharge est donc entretenue à la fois par l'onde de surface dans le plan de la cathode et par l'onde de surface le long du tube de décharge. Cela pourrait expliquer le renforcement du plasma en densité électronique et, donc, en courant pour la cathode CHF4 (Ø 11/13 mm) et, par la suite, ce sont ces dimensions qui sont retenues.

3.3.2 Positionnement du diélectrique par rapport au plan des conducteurs

Pour la cathode CHF4, l'influence de la position du diélectrique de passage des micro-ondes par rapport au plan des conducteurs a été investiguée dans les conditions opératoires précisées dans le tableau 3.4.

Diamètres	Diamètre	Plan diélectrique/	Distance	Diamètre	Pression	P_T
Tube	Tube	Plan conducteurs	inter-électrodes	anode	argon	
cathode	décharge					
Ø = 11/13	Ø = 14	z = variable de	$D_{ak} = 10,5 \text{ cm}$	$\emptyset = 12 \text{ mm}$	1 Torr	5 W
mm	mm	l'étude				

Tableau 3.4 Conditions opératoires et géométrie de la décharge planaire hybride (HF&DC).

La figure 3.19 présente les courbes I-V pour plusieurs positions du diélectrique : z = 0 lorsque le diélectrique et les conducteurs de la cathode sont dans le même plan ; z < 0 signifie que le diélectrique est reculé par rapport aux conducteurs et, à l'opposé, pour z > 0, le diélectrique est avancé.



Figure 3.19 Caractéristiques I-V d'une décharge planaire hybride (HF&DC) pour différentes positions du diélectrique par rapport au plan des conducteurs : z = 0 diélectrique et conducteurs dans le même plan ; z < 0 diélectrique en retrait ; z > 0 diélectrique avancé par rapport aux conducteurs.

Conditions opératoires : 1 Torr, $P_T = P_i - P_r = 5$ W = 5 W, géométrie *cf.* tableau 3.4.

La figure 3.19 montre clairement que la disposition en retrait du diélectrique est plus favorable en termes de courants. Cela peut s'expliquer par le positionnement de la zone d'initiation du plasma HF dans un volume confiné, délimité par les parois métalliques des conducteurs, ce qui réduit les pertes par rayonnement HF. Toutefois, ce confinement génère un chauffage d'autant plus important du tube de

cathode que le diélectrique est en retrait, ce qui devient préjudiciable pour les joints toriques assurant l'étanchéité au vide. La surchauffe des joints conduit à des impuretés dans le gaz plasmagène et, par conséquent, à une diminution conséquente du courant de décharge. Pour limiter ces effets, seule la solution z = -5 mm a pu être retenue.

L'influence de la disposition du diélectrique par rapport aux conducteurs a été également examinée du point de vue de l'émission des photons par la décharge. Celle-ci est représentée sur la figure 3.20-a sous forme de flux énergétique F_e intégré sur le domaine spectral de 230 à 1000 nm (tel que défini dans l'annexe 1, équation A1.3) et comparée à la puissance électrique P_E appliquée à la décharge. Etant donnée la séparation des deux plasmas de lueur négative (LN) et de colonne positive (CP) par l'espace sombre de Faraday (ESF), le flux énergétique a été mesuré et représenté sur la figure 3.20-a pour chacun des plasmas, le flux énergétique F_e (DC) correspondant à celui rayonné par la CP et le flux F_e (HF) rayonné par la LN. De la même manière, la puissance électrique P_E est décomposée en puissances DC ($P_{DC} = I_{d \cdot max}V_d$, avec $V_d \sim 60$ V) et HF. Comparativement à l'équation 3.5, la puissance HF représente ici, non pas la puissance active P_a , mais celle transmise $P_T = P_i - P_r$, voire incidente dans ce cas de cathode optimisée ($P_T = P_i$). Cela revient à ramener le rendement électrique η_{HF} (équation 3.3) au rendement η_T (équation 3.1) de transmission de puissance par l'applicateur, sans tenir compte des pertes par rayonnement HF.

Comme précisé dans le chapitre 2, section 2.4.2, le rapport du flux énergétique et de la puissance électrique définit le rendement énergétique r_e d'émission de photons. Celui-ci est représenté sur la figure 3.20-b sur laquelle le courant de décharge I_{d-max} est ajouté pour souligner la corrélation rendement - courant. Aussi, à titre comparatif, les grandeurs obtenues pour une décharge dépourvue de la composante DC ($V_d = 0$) sont reportées sur les figures 3.20-a et b.



Figure 3.20 a) Rendement énergétique et courant maximum $I_{d\text{-max}}$ de décharge ; b) Puissance électrique et flux énergétique rayonné. Conditions opératoires : 1 Torr, $P_T = P_i - P_r = 5$ W, géométrie *cf*. tableau 3.4.

i) cathode planaire HF (V_d = 0), z = 0 mm ; ii) cathode planaire HF (V_d = 0), z = -5 mm ;
iii) cathode planaire HF&DC (V_d ≠ 0), z = 0 mm ; iv) cathode planaire HF&DC (V_d ≠ 0), z = -5 mm ;
v) cathode planaire HF&DC (V_d ≠ 0), z = -9 mm.

Comme le montre la figure 3.20-a, la puissance P_{DC} contribue à l'accroissement du flux énergétique et celui-ci est davantage augmenté pour un retrait du diélectrique à z = -9 mm. Le confinement résulté du positionnement du diélectrique par rapport au plan des conducteurs permet donc de renforcer le plasma de LN, ce qui amène au renforcement du plasma de CP (*i.e.*, augmentation du courant I_{d-max} à $V_d \sim 60$ V constant, figure 3.20-b) et, par conséquent, à l'élévation du rendement énergétique global de la décharge (figure 3.20-b).

Dans les conditions présentes où seule la configuration à z = -5 mm peut être retenue (pour les raisons plus haut mentionnées) et où la puissance consommée par la décharge est ici tout simplement assimilée à la puissance transmise ($P_T = P_i$), le rendement énergétique obtenu est très faible (~4,5%, figure 3.20-a-iv). Cette valeur peut être reconsidérée si on prend en compte le fait que seulement une partie de la puissance HF transmise est effectivement injectée dans la décharge (~20% étant perdue par rayonnement hors décharge) et que seule une fraction de cette dernière (~75%, d'après la figure 3.11) est utilisée pour le chauffage ohmique. Dans ce cas, le rendement passe de 4,5 à 6%, mais il reste en deçà des attentes.

3.3.3 Distance inter-électrodes

Cette section présente l'influence de la distance inter-électrodes sur le courant de décharge dans les conditions indiquées ci-dessous (tableau 3.5) :

Diamètres	Diamètre	Plan diélectrique/	Distance	Diamètre	Pression	P_T
Tube	Tube	Plan conducteurs	inter-	anode	argon	
cathode	décharge		électrodes			
Ø = 11/13	Ø = 14 mm	- 5 mm	$D_{ak} = variable$	Ø = 12	1 Torr	5 W
mm			de l'étude	mm		

Tableau 3.5 Conditions opératoires et géométrie de la décharge planaire hybride (HF&DC).

La figure 3.21 représente la caractéristique I-V pour différentes distances inter-électrodes et elle montre l'augmentation nette des courants, suivie de la diminution des tensions associées au maximum de courant lorsque les électrodes sont rapprochées.

Dans la section 3.2 (figure 3.13), nous avons noté que la tension correspondant au maximum de courant reste sensiblement la même ($V_d \sim 55-60$ V) lorsque la puissance HF varie et que, dès l'application d'une composante continue, le couplage de l'onde au plasma était modifié en obtenant un maximum (maximum de puissance ohmique) pour un couple de valeurs (V_d , I_{d-max}). D'après l'évolution des courants de la figure 3.21, le meilleur couplage correspondant aux couples de valeurs (V_d , I_{d-max}) est obtenu pour des tensions clairement différentes : $V_d \sim 55$ V ($I_{d-max} = 44$ mA) à $D_{ak} = 10,5$ cm contre $V_d \sim 25$ V ($I_{d-max} = 60$ mA) à $D_{ak} = 2,2$ cm.



Figure 3.21 Caractéristiques I-V de la décharge planaire hybride (HF&DC) pour différentes distances inter-électrodes et images représentatives prises au maximum du courant de décharge pour des décharges sans CP ($D_{ak} < 2,2$ cm) et avec CP ($D_{ak} \ge 4,9$ cm). Conditions opératoires : 1 Torr, $P_T = P_i = 5$ W, géométrie *cf.* tableau 3.5.

Du point de vue du couplage HF, il est intéressant d'observer qu'à son maximum (*i.e.*, pour les couples (V_d , I_{d-max})), le rendement η_a de couplage est le même, quelle que soit la distance entre les électrodes. En effet, les deux composantes d'impédance relevées dans le plan de cathode à $P_T = P_i = 5$ W, affichent sur la figure 3.22 des valeurs comparables (*e.g.*, $R \sim 6 \Omega$ et $X \sim 0.8 \Omega$), aussi bien pour $V_d \sim 25$ V ($I_{d-max} = 60$ mA) à $D_{ak} = 2,2$ cm, que pour $V_d \sim 55$ V ($I_{d-max} = 44$ mA) à $D_{ak} = 10,5$ cm. Cela donne un rendement (*cf.* équation 3.2) proche de 100 % : $\eta_a = 99,2$ %. Comme les images de la figure 3.21 montrent bien l'absence de CP à courte distance, on peut conclure que le couplage maximum (invariant au changement de distance inter-électrodes, mais différent par rapport à celui d'une décharge purement HF, voir figures 3.9 et 3.10) est déterminé par le couple de valeurs (V_d , I_{d-max}) avec la formation ou non d'une CP dans la décharge.

Enfin, l'augmentation des courants avec la diminution de la distance inter-électrodes et, donc, de la longueur de la décharge, peut être en partie expliquée par la réduction des pertes sur les parois latérales. Cela se traduit par une puissance DC déposée par unité de longueur de décharge ($V_d I_{d-max}/D_{ak}$) plus importante lorsque la distance inter-électrodes diminue : 0,68 W/cm à $D_{ak} = 2,2$ cm contre 0,23 W/cm à $D_{ak} = 10,5$ cm.



Figure 3.22 Impédance de la décharge planaire hybride (HF&DC) pour différentes distances-inter électrodes. Les symboles ouverts représentent la réactance et les symboles pleins la résistance. Conditions opératoires : 1 Torr, $P_T = P_i - P_r = 5$ W, géométrie *cf*. tableau 3.5.

D'après l'équation 3.4, la diminution de la tension et l'augmentation du courant permet de réduire l'ESF. Toutefois, même dans le cas le plus favorable ($D_{ak} = 2,2$ cm sur la figure 3.21-a), cet espace n'est malheureusement pas complétement éradiqué.

On peut également rappeler que l'augmentation de la tension V_d au-delà de la valeur du I_{d-max} conduit à l'accroissement de la contribution des électrons secondaires à la production du plasma au détriment du plasma HF (*cf.* section 3.1.2). Ce phénomène peut être aussi visuellement observé sur la figure 3.23 pour des petites distances inter-électrodes, soit $D_{ak} = 1,5$ cm, où l'augmentation de la tension de 22,5 à 55 V conduit à la diminution du courant, de 73 à 25 mA, se traduit par une diminution du volume du plasma de LN. Pour les distances les plus grandes ($D_{ak} > 10,5$ cm), ce mécanisme de production par les électrons secondaires, propre aux décharges DC, est davantage présent puisque le maximum de courant est obtenu à plus de 90 V, sans compter qu'à de telles tensions, la cathode est sujette à la pulvérisation par bombardement ionique.



Figure 3.23 Photos d'une décharge planaire hybride (HF&DC) en configuration planaire à $D_{ak} = 1,5$ cm pour : a) $V_d = 22,5$ V, $I_{d-max} = 73$ mA ; b) $V_d = 50$ V, $I_d = 25$ mA. Conditions opératoires : 1 Torr, $P_T = P_i - P_r = 5$ W, géométrie *cf.* tableau 3.5.

Pour pouvoir faire un choix de la distance entre les électrodes, l'investigation énergétique a également été conduite, de la même manière que celle effectuée pour les différents positionnements du diélectrique de passage de micro-ondes. La figure 3.24-a présente donc l'évolution du flux énergétique, rayonnée par tronçon de décharge hybride (LN, CP et décharge dans son ensemble) en fonction de la distance inter-électrodes, et la figure 3.24-b l'évolution du rendement énergétique associé. Pour alléger la figure 3.24-a, la puissance électrique appliquée à la décharge est présentée sur la figure du rendement énergétique.

On précise que ces mesures ont été effectuées à une puissance transmise de 10 W (au lieu de 5 W) afin de minimiser la contribution d'électrons secondaires par rapport à celle du champ HF à la production du plasma. Comme auparavant, les valeurs représentées sur la figure 3.24 correspondent aux mesures effectuées aux maximas des courants et aux potentiels associés (V_d , I_{d-max}).



Figure 3.24 a) Flux énergétique rayonné par le plasma de lueur négative, de colonne positive et par la décharge dans sa totalité en fonction de la distance inter-électrodes ; b) Rendement énergétique de la décharge planaire hybride (HF&DC) et puissance électrique correspondante. Conditions opératoires : 1 Torr, $P_T = P_i - P_r = 10$ W, géométrie *cf.* tableau 3.5.

Quelle que soit la distance inter-électrodes, le flux énergétique rayonné par la LN (plasma de cathode HF) est le même, ce qui valide l'invariance du couplage au changement de distance. Par contre, malgré la diminution du courant avec l'augmentation de la longueur de la décharge (*cf.* figure 3.21) et de la diminution de la puissance DC par unité de longueur qui en résulte, le rendement énergétique augmente. En effet, celui-ci est déterminé par l'intégration du flux rayonné (figure 3.24-a) et de la puissance électrique (figure 3.24-b) sur toute la longueur de la décharge, ce qui donne un rendement plus élevé à plus grandes distances. Toutefois, pour les raisons précisées plus haut (émission d'électrons secondaires
et pulvérisation de la cathode) nous avons choisi la distance $D_{ak} = 10,5$ cm pour l'étude présentée dans la section 3.2.

3.3.4 Influence de la pression

L'influence de la pression sur les caractéristiques électriques de la décharge (I_d , V_d) et sur la densité du plasma de colonne positive est ici analysée pour la géométrie jusqu'ici retenue et pour une puissance transmise $P_T = 5$ W (*cf.* tableau 3.6).

Diamètres	Diamètre	Plan diélectrique/	Distance	Diamètre	Pression	P_T
Tube	Tube	Plan conducteurs	inter-	anode	argon	
cathode	décharge		électrodes			
Ø = 11/13	Ø = 14 mm	z = - 5 mm	$D_{ak} = 10,5$	Ø = 12	variable	5 W
mm				mm		

Tableau 3.6 Conditions opératoires de la décharge planaire hybride (HF&DC).

Naturellement, lors de cette investigation nous avons recherché la pression optimale qui mène à un minimum de tension nécessaire à l'entretien de la décharge associée à un maximum de courant. Pour une exploration rapide en y associant des mesures de densité du plasma au niveau de la colonne positive, nous avons utilisé un circuit comportant une résistance de ballast ($R_b = 23,8 \text{ k}\Omega$) et nous nous sommes limités à une faible puissance transmise, soit $P_T = 5 \text{ W}$.

Le profil de la tension de décharge, présenté sur la figure 3.25 montre un très léger minimum autour de 1 Torr. Toutefois, les valeurs obtenues restent du même ordre de grandeur et la variation corrélative du courant reste insignifiante dans le domaine de pression exploré.



Figure 3.25 Tension et courant de décharge en fonction de la pression d'argon. Conditions opératoires : $P_T = P_i - P_r = 5$ W, $R_b = 23.8$ k Ω , géométrie selon tableau 3.6.

Bien évidemment, l'invariance du courant au changement de pression ne signifie pas l'invariance de la densité électronique. En effet, du fait des variations de la mobilité et du champ électrique dans la colonne positive [61], l'équation 3.5 conduit à une augmentation de la densité avec la pression lorsque le courant reste constant. Cela est expérimentalement vérifié et, comme il peut être observé sur la figure 3.26, l'augmentation de la pression de 1 à 5 Torr permet de multiplier la densité par un facteur supérieur à 2.



Figure 3.26 Densité électronique du plasma de colonne positive en fonction de la pression d'argon. Conditions opératoires : $P_T = P_i - P_r = 5$ W, $R_b = 23.8$ k Ω , géométrie selon tableau 3.6.

Bien que l'augmentation de la pression aille dans le sens d'une meilleure production de photons, la pression de 1 Torr a été finalement retenue pour l'analyse détaillée présentée dans la section 3.2. En effet, ce choix n'a pas d'impact sur la suite puisque, pour les gaz avec émetteurs moléculaires, la composition et la pression seront ajustées pour maximiser l'émission optique dans le domaine spectral souhaité.

3.4 Décharges HF et HF&DC à cathode de configuration cylindrique

Au regard des résultats de l'étude de décharges hybrides à onde de surface avec une cathode en configuration planaire, nous nous sommes également intéressés aux configurations de cathode générant une onde de surface cylindrique. En effet, à puissances égales, les décharges à onde de surface cylindrique s'étendent sur des longueurs plus importantes que celles obtenues en configuration planaire (voir figures 1.11 et 1.12), avec les avantages que cela peut procurer, *e.g.*, fortes densité et luminance du plasma, sans discontinuité en émission [62,63,64], ce qui peut les rendre aussi attrayantes pour les applications à l'éclairage.

Les configurations utilisées sont celles représentées dans le premier chapitre (figure 1.15, section 1.3.3) et reprises ici, de manière schématique, sur la figure 3.27. Pour l'obtention d'une onde de surface cylindrique, le tube de décharge fait corps commun avec le diélectrique de passage des micro-ondes (figure 3.27-a) et, de ce fait, leurs diamètres sont identiques (\emptyset 7/9 mm). Cette configuration se prête bien à un fonctionnement en régime dynamique pour un gaz inerte (*e.g.*, argon) ou un mélange non-réactif, à condition d'enfermer le système dans un deuxième tube (\emptyset 21/23 mm) pour assurer l'étanchéité au vide de l'ensemble., et l'excitation HF s'effectue de la même manière que pour la décharge à cathode planaire.

Par contre, le fonctionnement en régime dynamique est inapproprié à l'utilisation d'un gaz réactif et, en particulier, d'un mélange avec du soufre. L'utilisation du soufre requiert le scellement du tube de décharge à ses deux extrémités (figure 3.27-b) et, donc, un travail en régime statique. Dans ce cas, la présence du deuxième tube extérieur n'est plus exigée, mais l'excitation HF ne peut être réalisée que par l'extérieur de l'âme centrale et, donc, du tube de décharge.



Figure 3.27 Schéma de cathodes à onde de surface cylindrique : a) configuration à double tube ; b) configuration à un tube de décharge.

Pour différencier les deux types de cathode avec leur excitation HF spécifique, nous retenons la terminologie introduite dans le premier chapitre (section 1.3.3), à savoir : cathode à excitation interne (*i.e.*, âme centrale interne, emboitée dans le tube de cathode et de décharge) pour la configuration

3.27-a à double tube et applicateur à excitation externe (*i.e.*, âme centrale externe, le tube de décharge étant emboité dans l'âme centrale) pour la configuration 3.27-b.

Par rapport à la cathode de configuration planaire, les dimensions radiales du tube de décharge sont réduites (\emptyset 7/9 mm contre \emptyset 11/13 mm) pour des raisons de contraintes telles que définies par les fournisseurs pour la réalisation des tubes scellés.

Dans cette section, nous présentons les caractéristiques et les performances énergétiques des décharges à onde de surface cylindrique en argon, pour les deux types de cathode : cathode non scellée (excitation dite interne) et cathode scellée (excitation dite externe). Les résultats présentés dans ce qui suit concernent principalement les décharges HF et, le cas échéant (*i.e.*, lors de l'utilisation d'une lampe à cathode scellée réalisée par le fournisseur Flashlamp), les résultats comparatifs des décharges HF et hybrides (HF&DC) sont également donnés.

3.4.1 Décharge à cathode non scellée de configuration à onde de surface cylindrique

Du fait de l'ouverture du tube de décharge et selon la puissance HF appliquée, deux régimes distincts peuvent être observés (figure 3.28) : l'un à 1 colonne de plasma et l'autre à 2 colonnes.



Figure 3.28 a) Photo de la décharge cylindrique en régime à 1 colonne. Conditions opératoires : 1 Torr, $P_T = P_i - P_r = 3$ W ; b) Photo de la décharge cylindrique en régime à 2 colonnes. Conditions opératoires : 1 Torr, $P_T = P_i - P_r = 10$ W. Comme il est indiqué sur la figure 3.28, le régime à 2 colonnes de plasma peut se produire lorsque la puissance est assez élevée (10 W contre 3 W pour le régime à une colonne) pour que le champ à l'extérieur du tube de cathode devienne suffisant pour l'allumage d'un deuxième plasma, allumage suivi par une rétraction longitudinale de la décharge.

Cela peut être mis en évidence de manière qualitative à l'aide du modèle à un port (*cf.* section 2.2.2, chapitre 2) construit dans un premier temps pour le régime à 1 colonne, en considérant un profil longitudinal de permittivité du plasma et une distribution uniforme dans le plan transverse. La permittivité a été préalablement déterminée à partir des équations 1.3, 1.4 et du profil expérimental de la densité électronique (*cf.* section 3.4.3), en considérant $v = 2 \, 10^9 \, \text{s}^{-1}$ pour la fréquence de collisions.



Figure 3.29 Simulation de la répartition du champ HF d'une décharge à onde de surface cylindrique entretenue par un applicateur interne. a) régime à 1 colonne ; b) régime à 2 colonnes. Conditions d'entrée : n = profil expérimental tel qu'indiqué sur la figure 3.42 à 1 Torr, $v = 2 \ 10^9 \ s^{-1}$, $P_T = 10 \ W$.

La répartition de la norme du champ HF, présentée sur la figure 3.29-a pour 10 W, démontre l'existence du plasma à l'intérieur du tube de cathode (champ fortement atténué) sur une longueur de plus de 8 cm, mais aussi celle d'un champ électrique de forte intensité (jusqu'à 200 V/cm) à proximité de l'injection des micro-ondes. Cela peut justifier l'amorçage d'un plasma à l'extérieur du tube de cathode mais, naturellement, la transition vers le régime à 2 colonnes ne peut pas être matérialisée en l'absence d'un modèle auto-cohérent. Toutefois, en considérant la transition produite, nous avons refait la simulation du régime à 2 colonnes pour un profil de densité du plasma à l'extérieur du tube de cathode identique à celui du plasma à l'intérieur du tube. Malgré la différence avec la réalité, le résultat obtenu (figure 3.29-b) prouve que la décharge est rétractée (30 mm contre 80 mm pour le régime à 1 colonne), mais surtout qu'il y a une absorption du champ, ce qui revient à dire que le rayonnement HF hors décharge est entièrement réduit par rapport à celui obtenu en régime à 1 colonne : 0 W de puissance rayonnée pour

2 colonnes contre 2,5 W pour 1 colonne, soit 25% de pertes par rayonnement hors décharge pour ce dernier.

La figure 3.30 illustre la différence majeure, en termes de luminance, entre les deux régimes, à 1 colonne de longueur $L_1 = 100$ mm (Figure 3.30-a) et à 2 colonnes de longueur $L_2 = 30$ mm (figure 3.30-b), pour une puissance transmise identique ($P_T = P_i - P_r = 6$ W).



Figure 3.30 Profil axial de la luminance intégrée sur les domaines UV, Visible et IR pour une décharge à onde de surface cylindrique entretenue par une cathode interne : a) régime à 1 colonne ($L_1 = 100$ mm) ; b) régime à 2 colonnes ($L_2 = 30$ mm). Conditions opératoires : 1 Torr, $P_T = P_i - P_r = 6$ W, tube de cathode non scellé.

La figure 3.30 montre, d'une part, une luminance qui décroit continuellement vers la fin de colonne de plasma, ce qui est en accord avec l'évolution de la densité du plasma le long de la colonne à température électronique constante (*cf.* section 3.4.3) et, d'autre part, des valeurs de luminance bien plus élevées (d'un facteur ~2) pour le régime à 2 colonnes. La plus forte luminance s'explique à la fois par la double couche de plasma émissive (intérieur et extérieur au tube de cathode) et par 25% de puissance de plus déposée dans la décharge en ce régime à 2 colonnes par rapport à celle obtenue en régime à 1 colonne.

L'influence de la pression sur la luminance est présentée sur la figure 3.31-a, pour le régime à 1 colonne de longueur $L_1 = 100$ mm. Afin de préserver la longueur de la colonne constante, la puissance HF a été modifiée en conséquence et la valeur de la puissance transmise est reportée sur cette même figure. Une évolution similaire (non représentée) a été observée pour le régime à 2 colonnes de longueur $L_2 = 30$ mm maintenue constante.

Le rendement énergétique d'émission r_e , déduit à partir de ces valeurs (L_e , P_T), est représenté sur la figure 3.31-b en fonction de la pression d'argon pour les deux régimes. Tout d'abord, on peut noter

l'évolution semblable de courbes pour les deux régimes, avec une pression optimale au maximum de rendement située autour de 1,5 - 2 Torr pour une décharge d'argon. A plus haute pression, la diminution du rendement est due à l'effet conjugué du phénomène d'auto-absorption des photons par la décharge elle-même, qui fait décroitre fortement la luminance, et de l'augmentation de la puissance requise pour maintenir la colonne de plasma constante. A l'opposé, p < 1,5 Torr, ce sont les pertes des espèces du plasma qui deviennent plus importantes, ce qui amène à une augmentation significative de la puissance d'entretien de la décharge.



Figure 3.31 a) Luminance énergétique et puissance transmise en fonction de la pression pour une décharge à onde de surface cylindrique en régime à 1 colonne ($L_1 = 100$ mm, constante) ; b) Rendement énergétique en fonction de la pression pour les 2 régimes :

1 colonne ($L_1 = 100$ mm) et 2 colonnes ($L_2 = 30$ mm).

De la figure 3.31, il en ressort clairement que le régime à 2 colonnes est plus efficace, avec un maximum de rendement (~11 %) bien supérieur à celui atteint par la décharge hybride (HF&DC) en configuration planaire (~4,5 %).

3.4.2 Décharge à cathode scellée de configuration à onde de surface cylindrique

Pour les applications à l'éclairage, la nécessité de travailler en régime statique dans des tubes scellés apparait plus qu'évidente. Avec les contraintes actuelles exprimées par les fournisseurs jusqu'ici identifiés, la configuration à double paroi permettant l'obtention du régime à 2 colonnes de plasma n'a pas pu être réalisée. De ce fait, nous avons été amenés à utiliser une cathode à excitation externe (*cf.* figure 3.27-b) pour s'approcher autant que possible de la configuration à tube (cathode) scellé proposée par les fournisseurs.

La configuration étudiée et présentée ci-après a été réalisée par nos soins après une optimisation en amont, par la simulation à 1 port, pour minimiser la réflexion au port d'entrée (*cf.* chapitre 2, section 2.2.2). La répartition du champ électrique HF a déjà été présentée sur la figure 2.5, mais elle est reportée ici (figure 3.32) pour faciliter la comparaison immédiate avec la figure 3.29-a correspondant à un tube non scellé, à excitation dite interne. En effet, la répartition du champ électrique HF est tout à fait similaire et le taux de fuites HF est du même ordre de grandeur (21% pour la cathode à excitation externe contre 25% pour celle à excitation interne). Par contre, un très léger gain en rendement énergétique, r_e , est observé pour la cathode à excitation externe (*cf.* figure 3.33).



Figure 3.32 Répartition du champ électrique obtenue par la modélisation à 1 port d'une décharge à onde de surface cylindrique entretenue par une cathode cylindrique externe. Conditions d'entrée : n = profil expérimental, v = 2 10⁹ s⁻¹ (1 Torr), P_T = 10 W.



Figure 3.33 Rendement énergétique en fonction de la pression pour la décharge à onde de surface cylindrique entretenue par cathode interne (régime à 1 colonne) et externe. Conditions opératoires : $P_T = P_i - P_r$ = variable de 5 à 10 W pour maintenir $L_1 = 100$ mm constante.

La décharge à onde de surface cylindrique a été aussi produite et examinée dans une lampe à cathode scellée fournie par Lampeflash. Comme il peut être observé sur la figure 3.34, cette lampe est munie d'une électrode à chacune de ses extrémités ($D_{ak} = 10,5$ cm), ce qui rend possible l'alimentation simultanée HF et DC et, donc, la réalisation d'une décharge hybride (HF&DC). On note également que la pression de remplissage de cette lampe est de 1 Torr, alors que la valeur optimale de maximum de rendement (figure 3.33), déterminée avec celle réalisée par nos soins, est clairement supérieure. Ce choix délibéré a été effectué à des fins de comparaison des performances des décharges hybrides (HF&DC) à cathode cylindrique avec celles de configuration à cathode planaire.



Figure 3.34 Décharge à onde de surface cylindrique obtenue dans une lampe à cathode scellée du fournisseur Flashlamp [65] : a) HF ($V_d = 0$ V) ; b) hybride HF&DC ($V_d = 80$ V). Conditions opératoires : 1 Torr, diamètres tube de cathode(décharge) 7/9 mm, distance inter-électrodes $D_{ak} = 10,5$ cm, $P_T = P_i - P_r = 3$ W.

La caractéristique I-V de la décharge Flashlamp (1 Torr) en fonctionnement hybride est tracée sur la figure 3.35 pour différentes puissances HF transmises. Contrairement à la décharge hybride en configuration planaire, le courant ne présente pas de maximum bien marqué et, outre ses très faibles valeurs, le courant continue d'augmenter légèrement après avoir atteint un *pseudo-maximum* autour de 80-90 V. Il faut se rappeler que, dans le cas présent, le diamètre intérieur du tube de décharge (Ø7 mm) est réduit par rapport à celui utilisé dans la configuration planaire (Ø14 mm), ce qui donne une surface 4,5 fois plus petite. A densité de courant égale, le courant serait nécessairement réduit dans la même proportion. De plus, la diminution de la section transversale donne lieu à une augmentation des pertes sur la paroi latérale du tube de décharge et, par conséquent, à une augmentation de la tension V_d par unité de longueur (*i.e.*, du champ électrique DC) nécessaire à l'entretien de la colonne positive. Cela peut expliquer les valeurs plus élevées (80-90 V contre ~60 V relevés pour la configuration planaire) requises pour atteindre un (pseudo)maximum de courant.

Lors de la formation de la colonne positive (CP), le même comportement est ici observé, à savoir, la rétraction du plasma de cathode (plasma HF ou plasma de lueur négative-LN) lorsque la contribution des électrons secondaires n'est plus négligeable, mais l'explication de l'augmentation du courant au-delà du pseudo(maximum) n'est pas évidente. Elle pourrait se trouver dans le volume plus

conséquent du plasma de LN (par rapport à celui obtenu en configuration planaire) qui constitue le réservoir principal de charges pour la CP.



Figure 3.35 Caractéristique I-V d'une décharge à onde de surface cylindrique hybride (HF&DC) -Flashlamp pour différentes puissances transmises. Conditions opératoires : 1 Torr.



Figure 3.36 Profil axial de la luminance énergétique intégrée sur les domaines UV, Visible et IR : a) $V_d = 0$ V ; b) $V_d = 80$ V. Conditions opératoires : 1 Torr, $P_T = P_i - P_r = 5$ W.

Le profil axial de la luminance énergétique, tracé sur la figure 3.36 pour les deux modes de fonctionnement, HF et hybride (HF&DC), montre la différence écrasante entre l'émission des deux plasmas de la décharge : LN (plasma de cathode) et CP. Dans cette configuration (Flashlamp, 1 Torr), l'ajout de la CP n'apporte donc pas un bénéfice énergétique, comme le démontre la figure 3.37 qui représente le rendement de la décharge en fonction de la puissance HF transmise (P_T).



Figure 3.37 Rendement énergétique en fonction de la puissance transmise (P_T) pour la décharge à onde de surface cylindrique HF et hybride (HF&DC). Conditions opératoires : 1 Torr, $V_d = 80$ V, $I_d = 1$ à 1,7 mA.

3.4.3 Quelques paramètres électriques d'une décharge à onde de surface cylindrique

Nous tenons à compléter la section 3.4 avec les paramètres électriques d'une décharge à onde de surface sur lesquels nous nous sommes appuyés dans les simulations à un port présentées, mais aussi dans l'analyse de la luminance énergétique présentée en 3.4.1 et 3.4.2. Plus précisément, il s'agit de la température d'excitation de l'argon, déterminée par spectroscopie d'émission (cf. 2.3.1) et de la densité électronique par la méthode d'auto-interférométrie (cf. 2.24). Ces paramètres ont été déterminés en régime dynamique, en utilisant le dispositif à cathode externe (voir figure 3.27-b) réalisé par nos soins avec le tube de décharge ouvert à l'extrémité opposée à la cathode.

Le profil axial de la température d'excitation de l'argon d'une décharge à onde de surface à 1 Torr, présenté sur la figure 3.38, montre qu'il n'y a pas de variation le long de la décharge. Cela valide l'hypothèse de fréquence de collisions constante le long de l'axe qui a été considérée dans les simulations à 1 port.



Figure 3.38 Profil axial de la température d'excitation de l'argon d'une décharge cylindrique. Conditions opératoires : 1 Torr, $P_T = P_i - P_r = 6.3$ W.

Comme attendu [66], la température d'excitation, moyennée sur toute la décharge, décroit avec la pression (figure 3.39) en raison de la diminution de pertes par diffusion vers les parois.



Figure 3.39 Température d'excitation de l'argon d'une décharge à onde de surface cylindrique en fonction de la pression. Conditions opératoires : $P_T = P_i - P_r = 6,3$ W.

En ce qui concerne la densité électronique, nous avons suivi le protocole décrit dans la section 2.2.4 du chapitre 2, qui consiste à mesurer le déphasage (φ) et l'atténuation ($P(z)/P_0$ en dB) du signal électrique prélevés le long de la décharge pour en déduire la constante de propagation (β), le coefficient d'atténuation (α) et, ensuite, la densité (n) du plasma.

Ces grandeurs sont représentées, dans l'ordre, sur les Figures 3.40, 3.41 et 3.42 pour trois pressions (0,25, 1 et 5 Torr) d'une décharge de longueur ($L_1 = 150$ mm) suffisante pour pouvoir déterminer correctement le coefficient de propagation.



Figure 3.40 a) Déphasage et b) Atténuation du signal mesuré le long de la décharge à onde de surface cylindrique de longueur $L_i = 150$ mm. Conditions opératoires : i) $P_T = P_i - P_r = 17,8$ W @250 mTorr ; ii) $P_T = P_i - P_r = 13$ W @1 Torr ; iii) $P_T = P_i - P_r = 8,6$ W @5 Torr.



Figure 3.41 a) Constante de propagation et b) Coefficient d'atténuation le long de la décharge à onde de surface cylindrique de longueur $L_i = 150$ mm. Conditions opératoires : $P_T = P_i - P_r = 17,8$ W @250 mTorr ; $P_T = P_i - P_r = 13$ W @1 Torr ; $P_T = P_i - P_r = 8,6$ W @5 Torr.



Figure 3.42 Densité électronique le long de la décharge à onde de surface cylindrique de longueur $L_1 = 150$ mm. Conditions opératoires : $P_T = P_i - P_r = 17,8$ W @250 mTorr ; $P_T = P_i - P_r = 13$ W @1 Torr ; $P_T = P_i - P_r = 8,6$ W @5 Torr.

Pour mémoire, les mesures de la figure 3.40 sont utilisées dans les équations 2.3 et 2.4 (section 2.2.4) pour la détermination des coefficients β et α (figure 3.41) qui, à leur tour, sont introduits dans le système d'équations de propagation du champ HF dans une structure à 3 milieux. Comme attendu [67,68], la densité électronique (figure 3.42) décroit linéairement avec la distance axiale et croît avec l'augmentation de la pression. En toute rigueur, la densité en fin de colonne doit se rapprocher de la densité critique, soit ~ 4 × 10¹¹ cm⁻³ (cf. équation 1.13, section 1.32.2), et l'extrapolation des courbes de la figure 3.42 montre que ceci est obtenu pour les pressions les plus basses. Par contre, la valeur obtenue pour 5 Torr est bien plus élevée, et cet écart peut être dû, d'une part, aux incertitudes plus importantes (du fait de longueurs d'onde λ plus grandes utilisées pour déterminer β , figure 3.40-a) et, d'autre part, à l'approximation considérée pour la fréquence de collisions $\nu(s^{-1}) \approx 2.10^9 p$ (torr) (cf. section 2.2.4).

Pour une pression de 1 Torr, on peut retenir la forte densité du plasma à onde de surface cylindrique, supérieure à 5.10^{11} cm⁻³ sur toute sa longueur, ce qui est bien plus élevé que la densité du plasma de colonne positive obtenue dans la configuration planaire hybride (HF&DC) (voir figure 3.18).

Conclusion du Chapitre 3

L'investigation des décharges en argon conduite et présentée dans ce chapitre, constitue l'approche préliminaire de la conception du prototype de lampe fluorescente à gaz réactif. Elle nous a permis, d'une part, d'aboutir à des configurations de cathode HF optimisée en transmission de puissance HF et améliorée en rendement énergétique d'émission des photons par la décharge et, d'autre part, de déceler les points limitants ce rendement.

Les résultats tirés de l'étude des décharges à cathode planaire démontrent que l'utilisation d'une cathode HF permet de diminuer de manière considérable la tension DC nécessaire à l'entretien de la décharge en mode hybride (HF&DC) et donc de la chute cathodique, cette dernière constituant la principale limitation à l'utilisation des gaz réactifs dans une décharge DC. Ainsi, dans les conditions opératoires utilisées (1 Torr) et pour la géométrie examinée en détail, c'est-à-dire tube de décharge T5 (14 mm) avec cathode dimensionnée à 11/13 mm et distance inter-électrodes de 10,5 cm, la tension est réduite de quelques centaines de volts à seulement une soixantaine. Nous avons montré que cette tension correspond à un maximum de courant et, donc, à un maximum de rendement énergétique en émission de photons. Le mode hybride (HF&DC) présente clairement des avantages et ce, d'autant plus que la présence de la colonne positive permet l'augmentation (de ~3 à 5,5 %) du rendement énergétique global de la décharge. L'étude conduite a également révélé l'importance de la conception de la cathode HF sur le rendement. En effet, dans les mêmes conditions opératoires, celui-ci pourrait être multiplié par un facteur 2 lors de l'utilisation pour une configuration de cathode permettant, d'une part, la suppression des pertes par rayonnement HF hors décharge et, d'autre part, l'optimisation du couplage onde-plasma. Toutefois, sans compter la faible émission des photons par le plasma de colonne positive par rapport à celle du plasma de lueur négative (plasma de cathode HF), la présence d'un espace sombre (espace sombre de Faraday) dessert l'application à l'éclairage de ce type de décharges hybrides en configuration planaire lorsqu'un gaz réactif, comme le mélange avec du soufre, est envisagé.

Nous avons alors démontré, dans ce même chapitre, qu'une *décharge à cathode cylindrique* peut être énergétiquement plus avantageuse que celle à cathode planaire (10% contre 4,5%), de par sa longueur plus importante que celle du plasma de cathode planaire et sa forte émission, sans discontinuité sur cette longueur. Par contre, tout comme pour la décharge à cathode planaire, le problème du rayonnement HF hors décharge demeure. De ce point de vue, nous avons présenté une configuration particulièrement intéressante, décharge à double paroi, capable d'optimiser l'utilisation de la puissance HF. Toutefois, en raison des contraintes technologiques liées au scellement diélectrique/métal, cette configuration n'a pas été retenue pour l'étude des décharges avec un gaz de mélange argon-soufre. Pour cette étude, développée dans le chapitre 4 qui suit, la configuration à 1 tube de décharge a été retenue, et ce, avec un dimensionnement également imposé par ces mêmes contraintes techniques.

CHAPITRE 4. Étude des décharges réactives pour la conception de lampe fluorescente

Introduction du Chapitre 4

L'étude de nos décharges en argon présentée dans le chapitre précédent nous a permis d'arriver à plusieurs configurations de décharge optimisées (transmission de puissance HF, géométrie de la terminaison). Cependant, le spectre d'émission de l'argon est pauvre dans le domaine du visible et ne contient que des raies localisées. Pour l'élaboration d'une lampe fluorescente, il faut donc enrichir le spectre d'émission de la décharge dans le domaine UV + Visible. En ce sens, les pistes envisageables sont multiples : décharge de vapeurs métalliques haute pression (HPS), de xénon à haute pression (lampe à arc) ou encore, comme décrit dans le chapitre 1, décharge de vapeurs de mercure basse pression avec des luminophores appropriés. Dans notre cas, la piste choisie est celle d'une décharge moléculaire basse pression pour la production de photon UV, combinée à l'utilisation de luminophores adaptés à la conversion UV-Visible.

Pour la production de photon UV + Visible, deux candidats sont envisagés : le mélange N_2/O_2 et le soufre (S₂). Le mélange N_2/O_2 permet la production de photons UV et Visible via à la fois l'émission des systèmes premier et second positif de la molécule de N_2 et l'émission du système γ de la molécule de NO. Une étude complète des performances des décharges en mélange Ar- N_2/O_2 est donc présentée et l'influence des proportions du mélange Ar- N_2/O_2 sur l'émission est discutée et vise l'optimisation du rendement de production de photon UV + Visible. Pour le cas du mélange Ar- S_2 , les différentes spécificités de la décharge liées notamment au chauffage du soufre sont exposées. Comme pour le cas du mélange N_2/O_2 , l'influence des proportions du mélange Ar/ S_2 sur la décharge est présentée et vise la maximisation du rendement de production de photon UV + Visible.

Le choix de la décharge Ar-S₂ pour la conception du prototype final de lampe fluorescente est justifié par une répartition spectrale plus adaptée à la conversion UV-Visible des luminophores. Pour arriver au prototype final de lampe fluorescente, nous présentons l'étude des performances, essentiellement photométriques, de la décharge Ar-S₂ dans le cas où elle est couverte par des films fluorescents chargés en luminophores. Les différentes compositions et proportions de luminophores choisies pour l'optimisation de la conversion UV-Visible de la décharge Ar-S₂ sont présentées et discutées. Pour finir, une description plus détaillée des performances du prototype final (*i.e.* optimisé au niveau de la décharge et optimisé en termes de composition de luminophores) est donnée et les axes d'amélioration possibles, évoqués.

Chapitre 4. Étude des décharges réactives pour la conception de lampe fluorescente

4.1 Etude des décharges réactives en mélange N₂/O₂

4.1.1 Caractéristiques des décharges Ar-N₂/O₂

Les décharges en mélange réactif N_2/O_2 sont des décharges qui présentent de nombreuses applications. En effet, leurs propriétés de réactivité les rendent utiles dans de nombreux domaines de la science et de l'industrie. On les retrouve à faible pression pour l'amélioration de la dureté de surface (sur quelques μ m) via la nitruration métallique [69] mais aussi à pression atmosphérique, pour l'agriculture via la génération d'espèces réactives favorisant la germination des graines [70,71].

Pour notre étude, on s'intéresse aux décharges basse pression en mélanges réactifs N_2/O_2 pour la production de photons UV + Visible. Les décharges en mélange Ar- N_2/O_2 ont été largement étudiées pour la stérilisation de surface via la production de photon UV de basses longueurs d'onde [72]. Leur émission couvre un large domaine qui s'étend des UV aux IR (200 – 800 nm). Le flux spectral (Wnm⁻¹) d'une décharge à onde de surface cylindrique entretenue dans un mélange Ar- N_2/O_2 à une pression de 1 Torr est présentée sur la figure 4.1.



Figure 4.1 Flux spectral d'une décharge à onde de surface cylindrique en mélange Ar-N₂/O₂. Conditions opératoires : 1 Torr, $P_T = P_i - P_r = 15$ W, fraction de gaz réactifs = 15%, pourcentage d'O₂ = 10 %.

Le premier système positif du N₂ : $B^3\Pi_g - A^3\Sigma_u$ recouvre une partie importante du domaine du visible de 500 à 750 nm et l'émission du second système positif du N₂ : $C^3\Pi_u - B^3 \Pi_g$ couvre quant à lui, les proches UV et le début du domaine visible (280 à 500nm). Le rôle de l'O₂ dans l'émission de cette décharge ne se manifeste, majoritairement, non pas par la présence de raies d'émission de l'oxygène atomique ou moléculaire, mais plutôt par l'émission UV (200 – 350 nm) des espèces NO formées dans la décharge [73]. On attribue le nom de NO γ aux espèces NO qui émettent dans la gamme de longueur d'onde comprise entre 200 et 300 nm et qui correspondent au système γ de la molécule de NO : $A^{3}\Sigma - X^{3}\Pi$. En vue de l'utilisation de la décharge de mélange Ar-N₂/O₂ pour la conception d'une lampe fluorescente, on cherche à maximiser à la fois l'émission UV de la décharge via la création d'espèces NO et l'émission visible via les systèmes premier et second positifs de la molécule de N₂.

Pour l'étude de nos décharges en mélange réactif Ar-N₂/O₂, on définit la fraction de gaz réactifs du mélange comme le quotient entre la pression partielle du gaz réactif et la pression totale du mélange : $\frac{p(N_2/O_2)}{p(Ar) + p(N_2/O_2)}$ (%). Dans le cas où le gaz réactif est un composé (N₂ et O₂ dans le cas présent), on appelle pourcentage d'O₂ le rapport de la pression partielle d'O₂ et de la pression partielle du composé réactifN₂/O₂ : $\frac{p(O_2)}{p(N_2/O_2)}$ (%).

A titre d'exemple, si l'on souhaite constituer un mélange réactif à 1 Torr dont les gaz réactifs (N_2/O_2) représentent en pression relative 25% et dans lequel le pourcentage d' O_2 représente 50% du mélange réactif, l'argon est injecté en premier dans l'enceinte de sorte que la pression atteigne 750 mTorr (75%). Dans un second temps, le N_2 est injecté pour que la pression atteigne 875 mTorr. Enfin, l' O_2 est injecté jusqu'à ce que la pression totale des gaz atteigne 1 Torr (100%), comme schématisé sur la figure 4.2.



Figure 4.2 Proportion du mélange de gaz dans un tube de décharge Ar-N₂/O₂.

La fraction de gaz réactifs ainsi que le pourcentage d' O_2 sont considérés dans cette section comme deux paramètres de décharge dont l'influence est étudiée.

4.1.2 Etude électrique et électromagnétique de la décharge hybride (HF&DC) à cathode planaire en mélange Ar-N₂/O₂

Pour l'étude des performances électriques de la décharge planaire hybride (HF&DC) en mélange Ar-N₂/O₂, la configuration choisie est celle de la décharge planaire hybride optimisée, c'est-à-dire en

configuration de cathode planaire avec un retrait du diélectrique de z = -5 mm. La puissance HF transmise (P_T) à la cathode est fixée à 10 W pour que la densité électronique du plasma au niveau de sa terminaison soit suffisamment élevée et ainsi s'affranchir des éventuelles variations importantes de couplage (section 3.2.1) qui entraineraient une variation de la puissance transmise et de la puissance active.

La figure 4.3-a présente le courant maximal atteint en fonction du pourcentage $d'O_2$ pour différentes fractions de gaz réactifs et la figure 4.3-b représente les tensions de décharges associées.



Figure 4.3 a) Courant maximal de décharge et b) Tension de décharge correspondante en fonction du pourcentage d'O₂ pour différentes fractions de gaz réactifs. Conditions opératoires : 1 Torr, $P_T = P_i - P_r = 10$ W.

La figure 4.3-a montre que les courants de décharges varient peu en fonction du pourcentage d'O₂, excepté pour les fortes fractions de gaz réactifs (35 %, 45 %) où l'on peut observer une légère diminution dans l'intervalle de 0 à 5% d'O₂. En revanche, on observe que le courant de décharge diminue fortement avec la fraction de gaz réactifs, en particulier entre 0 à 15%. La figure 4.3-b, montre que les tensions de décharge augmentent avec la fraction de gaz réactifs. Lorsque la fraction de gaz réactifs dépasse 5%, celles-ci deviennent, pour la distance inter-électrodes choisie ($D_{ak} = 10,5$ cm), suffisamment élevées pour que la décharge commence à basculer vers le régime DC (voir section 3.2.1). Afin de réduire la pulvérisation de la cathode qui en résulte, la distance inter-électrodes devrait être réduite (voir section 3.3.3).

Les courants et tensions de décharge présentées sur la figure 4.3 montrent que seule la fraction de gaz réactifs du mélange gazeux semble avoir une influence sur les courants et les tensions de décharge. Ces résultats expérimentaux laissent envisager que, dans la décharge planaire hybride de mélange Ar-N₂/O₂, l'argon joue un rôle majeur dans la production du courant et donc dans la production d'électrons.

L'évolution de l'impédance de décharge qui correspond aux courants présentés sur la figure 4.3 est présentée sur la figure 4.4.



Figure 4.4 Variation de l'impédance de décharge en fonction du pourcentage d'O₂ pour différentes fractions de gaz réactifs. Les symboles pleins représentent la résistance et les symboles ouverts la réactance. Conditions opératoires : 1 Torr, $P_T = P_i - P_r = 10$ W.

D'après la figure 4.4, il apparait que ni la fraction de gaz réactifs, ni le pourcentage d'O₂ n'affectent significativement l'impédance de décharge. Cela signifie que le couplage HF varie peu avec la composition du mélange de gaz, tant que la tension choisie est celle qui maximise le courant. L'invariance de Z_p ($R_p + i X_p$) observée pour le courant maximal de décharge sera exploitée pour la recherche de la composition qui optimise le rendement de production de photon UV + Visible de la décharge planaire hybride. Ceci nous permettra de confirmer que les variations de l'émission de la décharge ne sont occasionnées que par la composition du gaz et non pas par un effet du couplage.

4.1.3 Recherche de l'optimum de rendement de production de photons UV + Visible

Dans cette section nous présentons l'étude des variations de l'émission de la décharge planaire hybride (HF&DC) et de la décharge à onde de surface cylindrique avec la composition du mélange Ar-N₂/O₂. Chacune de ces décharges est entretenue par une cathode HF optimisée en transmission (*i.e.*, $P_r = 0$ W). Dans le cas planaire hybride, on se place, pour chaque mélange de gaz, à la tension de décharge qui maximise le courant. Comme nous l'avons vu dans la section précédente, ceci n'affecte pas le couplage (figure 4.4).

Les profils de luminance de la décharge planaire hybride et à onde de surface cylindrique (intégrés sur les domaines UV, Visible et IR) pour une pression de 1 Torr, une fraction de gaz réactifs de 45% et un pourcentage d' O_2 de 10% sont donnés sur la figure 4.5.



Figure 4.5 Profil axial de la luminance énergétique intégrée sur chacun des domaines UV, Visible, et IR : a) décharge planaire hybride (HF&DC). Conditions opératoires :
1 Torr, P_T = P_i − P_r = 10 W, fraction de gaz réactifs = 45%, pourcentage d'O₂ = 10% ;
b) décharge à onde de surface cylindrique. Conditions opératoires : 1 Torr, P_T = P_i − P_r = 25 W, fraction de gaz réactifs = 45%, pourcentage d'O₂ = 10%.

D'après la figure 4.5-a, la décharge planaire hybride présente un profil de luminance énergétique similaire à celui observé en Ar pur (figure 3.16). En effet, on observe que la luminance énergétique est élevée au niveau du plasma de cathode, devient quasiment nulle dans l'espace sombre, puis reste constante dans la colonne positive. Dans le cas de la décharge à onde de surface cylindrique (figure 4.5-b), on observe simplement une décroissance linéaire de la luminance énergétique le long de l'axe *z*.

Les profils de luminance présentés sur la figure 4.5 montrent que l'émission UV et Visible en présence de gaz réactif N_2/O_2 est plus importante que pour le cas de l'argon pur (figure 3.16) et qu'à l'inverse, l'émission IR est légèrement plus faible.

<u>Influence de la fraction de gaz réactifs</u> : La figure 4.6 compare, pour un pourcentage d'O₂ fixée à 10 %, les flux spectraux de la décharge planaire hybride $Ar-N_2/O_2$ mesurés lorsque la fraction de gaz réactifs est faible (5 %) et lorsqu'elle est plus élevée (35 %).



Figure 4.6 Flux spectral d'une décharge planaire hybride (HF&DC) pour des fractions de gaz réactifs de 5% et de 35%. Conditions opératoires : 1 Torr, $P_T = P_i - P_r = 10$ W, pourcentage d'O₂ = 10%.

D'après la figure 4.6, pour une fraction de gaz réactifs de 5%, le flux énergétique correspondant au flux spectral est de 0,35W alors qu'il est de 0,28 W pour 35%. Ceci montre que la contribution IR de l'argon dans l'émission est forte quand la fraction de gaz réactifs est faible et, à l'inverse, que la contribution UV + Visible du mélange N_2/O_2 est importante quand la fraction de gaz réactifs est plus élevée.

Les rendements énergétiques UV, Visible et IR, qui correspondent aux flux énergétiques d'émission de la décharge sur ces domaines de longueur d'onde divisés par la puissance totale électrique sont présentés en fonction de la fraction de gaz réactifs, pour la décharge planaire hybride sur la figure 4.7-a, et pour la décharge à onde de surface cylindrique sur la figure 4.7-b.



Figure 4.7 Rendements énergétiques associés aux domaines de longueur d'onde UV, visible et IR en fonction de la fraction de gaz réactifs : a) décharge planaire hybride (HF&DC). Conditions opératoires : 1 Torr, $P_T = P_i - P_r = 10$ W, pourcentage d'O₂ = 10%) ; b) décharge à onde de surface cylindrique. Conditions opératoires : 1 Torr, $P_T = P_i - P_r = 15$ W, pourcentage d'O₂ = 10%.

Comme observé en argon pur (section 3.2.2), le rendement énergétique de la décharge à onde de surface cylindrique est supérieur à celui de la décharge planaire hybride. La figure 4.7 montre également que le rendement énergétique (total) des deux décharges diminue avec la fraction de gaz réactifs, notamment entre 0 et 5 %. La diminution du rendement énergétique avec la fraction de gaz réactifs s'explique en grande partie, et ce pour les deux décharges, par une forte diminution de la densité électronique. La figure 4.8 présente l'évolution de la densité électronique de la colonne positive de la décharge planaire hybride avec la fraction de gaz réactifs, ainsi que les profils de densité électronique de la décharge à onde de surface cylindrique pour différentes fractions de gaz réactifs. Les densités électroniques ont été déterminées à l'aide des deux méthodes d'interférométrie décrites dans les sections 2.2.4 et 2.2.5 du chapitre 2. En présence d'O₂, les densités électroniques au niveau de la colonne positive sont trop faibles pour permettre à l'interféromètre micro-onde de mesurer le déphasage de l'onde aux fractions de gaz réactifs élevées. Pour cette raison, les densités électroniques présentées sur la figure 4.8-a ont été déterminées pour un pourcentage d'O₂ nul.



Figure 4.8 a) Evolution de la densité électronique mesurée au niveau de la colonne positive de la décharge planaire hybride (HF&DC) avec la fraction de gaz réactifs. Conditions opératoires : 1 Torr, $P_T = P_i - P_r = 10$ W, pourcentage d'O₂ = 0 % ; b) Profil axial de densité électronique d'une décharge à onde de surface cylindrique pour différentes fractions de gaz réactifs, les flèches indiquent la fin de colonne. Conditions opératoires : 1 Torr, $P_T = P_i - P_r = 25$ W, pourcentage d'O₂ = 0 %.

La figure 4.8 montre, pour les deux décharges, que la densité électronique diminue avec la fraction de diazote. Comme le nombre de collision ne change pas ou peu avec la nature du gaz ($T_e \sim \text{cste}$) [74], cette diminution est expliquée par une ionisation du gaz couteuse en énergie. En effet, une quantité importante d'énergie est perdue par les électrons dans la dissociation moléculaire du N₂ (9,765 eV), l'excitation des niveaux rovibrationels. En présence d'oxygène (plasma de mélange Ar-N₂/O₂), une perte d'énergie

supplémentaire serait attribuée à la formation d'ions négatifs O⁻. Pour le cas de la décharge à onde de surface cylindrique (figure 4.-b), on note une contraction de la décharge avec la fraction de gaz réactifs d'autant plus importante que la concentration de diazote augmente.

Comme le rayonnement IR ne présente pas d'intérêt pour l'application visée, la comparaison des rendements énergétiques d'émission des décharges planaire hybride et à onde de surface, donnée sur la figure 4.9, concerne uniquement le domaine UV + Visible.





Conditions opératoires : 1 Torr, pourcentage d' $O_2 = 10\%$, $P_T = 10$ W (planaire) et 15 W (cylindrique).

Les comportements du rendement énergétique UV + Visible avec la fraction de gaz réactifs observés sur la décharge planaire hybride et à onde de surface cylindrique Ar-N₂/O₂ sont similaires. En effet, le rendement énergétique UV + Visible présente pour les deux décharges un maximum autour de 15%. Dans la décharge Ar-N₂/O₂, le peuplement des niveaux radiatifs N₂(C) (niveau excité $C^3\Pi_u$, émetteur UV + Visible) est assuré par différents types de collisions dont les plus importantes sont les collisions électroniques :

$$\mathbf{e} + \mathbf{N}_2(\mathbf{X}) \to \mathbf{N}_2(\mathbf{C}) + \mathbf{e},\tag{4.1}$$

et les collisions des neutres métastables Ar (${}^{3}P_{2}$) :

$$Ar({}^{3}P_{2}) + N_{2}(X) \to Ar({}^{1}S_{0}) + N_{2}(C).$$
 (4.2)

Quand la fraction de gaz réactifs augmente, la contribution des réactions 4.1 et 4.2 au peuplement des états excités $N_2(C)$ diminue car la densité électronique ainsi que la concentration d'argon métastable chutent. Bien que le peuplement des états $N_2(C)$ reste assuré par d'autres réactions comme les collisions de métastables $N_2(A)$:

$$N_2(A) + N_2(A) \rightarrow N_2(C) + N_2(X),$$
 (4.3)

dont la concentration augmente avec la fraction de gaz réactifs [75], le peuplement des niveaux excités $N_2(C)$ finit par diminuer légèrement avec la fraction de gaz réactifs. Ceci se traduit donc, du point de vue de l'émission de la décharge, par une légère diminution du rendement de production de photons Visible avec la fraction de gaz réactifs.

A basse pression, la création comme la destruction des espèces NO sont majoritairement permise par la présence d'oxygène atomique selon la réaction [76] :

$$N_2(A) + 0 \leq N(^2D) + NO(X).$$

$$(4.4)$$

Le peuplement des niveaux excités NO(A) responsables de l'émission du système NO γ est assuré principalement par la réaction suivante :

$$NO(X) + N_2(A) \to NO(A) + N_2(X).$$
 (4.5)

Quand la fraction de gaz réactifs augmente, la concentration des espèces NO augmente et avec elle le peuplement des niveaux radiatifs NO(A). Lorsque la fraction de gaz réactifs devient trop importante la concentration des espèces NO se stabiliserait, voire diminuerait puisque la formation de ces espèces est limitée par la dissociation moléculaire de l'O₂, elle-même limitée par la densité électronique (figure 4.8). A ce stade, il conviendrait d'élaborer des modèles complets de nos décharges pour pouvoir l'affirmer. Au final, le rendement de production UV + Visible de la décharge augmente jusqu'à une fraction de gaz réactifs de 15% en raison du peuplement des états NO(A) et N₂(C) puis diminue lorsque la fraction de

L'évolution des températures rotationnelles et vibrationnelles en fonction de la fraction de gaz réactifs est présentée sur les figures 4.10-a et 4.10-b pour la décharge planaire hybride et la décharge à onde de surface cylindrique respectivement. Ces températures ont été déterminées par spectroscopie d'émission optique de la décharge à l'aide de la méthode présentée dans la section 2.3 du chapitre 2.

gaz réactifs est plus élevée en raison de la diminution conséquente de la densité électronique.



Figure 4.10 Evolution des températures rotationnelle et vibrationnelle en fonction de la fraction de gaz réactifs : a) décharge planaire hybride (HF&DC). Conditions opératoires : 1 Torr, $P_T = P_i - P_r = 10$ W, pourcentage d'O₂ = 10% ; b) décharge à onde de surface cylindrique. Conditions opératoires : 1 Torr, $P_T = P_i - P_r = 15$ W, pourcentage d'O₂ = 10%.

Comme évoqué dans la section 2.3.2 du chapitre 2, la figure 4.10 montre, pour le cas de la décharge planaire hybride, une décroissance rapide des températures rotationnelle et vibrationnelle avec l'augmentation de la fraction de gaz réactifs. Ceci confirme que pour les faibles fractions de gaz réactifs, la réaction 4.2 contribue au surpeuplement des états radiatifs $N_2(C)$ [77]. Dans le cas de la décharge à onde de surface cylindrique, un comportement contraire est observé : les températures rotationnelle et vibrationnelle augmentent avec la fraction de gaz réactifs. Cette augmentation est reliée à la contraction de la décharge (figure 4.8) et, donc, à l'augmentation de la densité de puissance HF par unité de longueur, ce qui conduirait à une augmentation de la température cinétique du gaz. Au-delà de 20% de gaz réactifs, cette augmentation des températures rotationnelle via la température cinétique serait concurrencée par la diminution de la contribution des réactions 4.1 et 4.2 au peuplement des états radiatifs $N_2(C)$.

Influence du pourcentage d'O₂ : L'O₂ seul ne joue aucun rôle notable dans l'émission de la décharge Ar-N₂/O₂. En revanche, comme nous l'avons évoqué, une fois dissocié, des espèces NO peuvent être formées dans la décharge selon la réaction 4.4 et ainsi fournir, via le système γ , une émission UV importante entre 200 et 300 nm. La figure 4.11 présente pour une fraction de gaz réactifs fixée à 15% la comparaison des flux spectraux de la décharge planaire hybride (HF&DC) pour deux différents pourcentages d'O₂.



Figure 4.11 Flux spectral d'une décharge planaire hybride (HF&DC) pour un pourcentage d'O₂ de 0 % et de 40 %. Conditions opératoires : 1 Torr, $P_T = P_i - P_r = 10$ W, fraction de gaz réactifs = 15%.

La figure 4.11 montre premièrement une diminution importante du flux énergétique de la décharge avec le pourcentage d'O₂. Lorsque le pourcentage d'O₂ est plus élevé, la contribution du N₂ dans l'émission UV et Visible diminue fortement au profit de celle de l'émission UV du NO γ . Le flux spectral de la décharge Ar-N₂ (pourcentage d'O₂ = 0 %) indique que les résidus d'O₂ déjà présents dans la décharge suffisent à former une population NO γ dont l'émission est déjà relativement importante. L'évolution du rendement énergétique de la décharge planaire hybride sur les domaines de longueur d'onde UV, Visible et IR en fonction de la pourcentage d'O₂ est présentée pour une décharge planaire hybride sur la figure 4.12-b.



Figure 4.12 Rendements énergétiques associés aux domaines de longueur d'onde UV, Visible et IR en fonction du pourcentage d'O₂ : a) Décharge planaire hybride (HF&DC) ; b) Décharge à onde de surface cylindrique. Conditions opératoires : 1 Torr, $P_T = P_i - P_r = 10$ W (planaire) et 15 W (cylindrique), fraction de gaz réactifs = 15%.

Pour les deux décharges on observe une diminution du rendement énergétique (total) avec le pourcentage d'O₂. Le rendement énergétique UV passe quant à lui, par un maximum aux alentours de 15% tandis que ceux associées à l'émission Visible et IR ne font que diminuer. La diminution du rendement énergétique associé à l'émission Visible et IR de la décharge Ar-N₂/O₂ avec le pourcentage $d'O_2$ s'explique en grande partie par le remplacement progressif du N₂ par l'O₂ qui lui, ne génère (même via les espèces $NO\gamma$) aucune émission Visible ou IR. Lorsque le pourcentage d'O₂ est faible, la concentration d'oxygène atomique est insuffisante pour permettre la formation des espèces NO(X) (réaction 4.4). L'émission UV de la décharge est donc plus faible car elle n'est fournie que par la partie UV du système second positif du N₂ (figure 4.11). Lorsque le pourcentage d'O₂ dépasse 15%, on observe que le rendement associé à l'émission UV diminue. Comme la concentration des espèces N₂(A) diminue avec le pourcentage d'O2, le peuplement des niveaux excités NO(A) diminuerait en accord avec la réaction 4.5. Toutefois, cette diminution peut également être expliquée, comme pour l'émission Visible et IR, par une diminution de la densité électronique avec le pourcentage d'O₂. La figure 4.13 présente l'évolution de la densité électronique de la colonne positive de la décharge hybride avec le pourcentage d'O2, ainsi que les profils de densité électronique de la décharge à onde de surface cylindrique pour différents pourcentages d'O₂. Dans la colonne positive, les densités électroniques n'ont pas pu être déterminées pour les pourcentages d'O₂ supérieurs à 5% car celles-ci sont trop faibles pour permettre la mesure de déphasage de l'interféromètre micro-onde.



Figure 4.13 a) Evolution de la densité électronique mesurée au niveau de la colonne positive de la décharge planaire hybride (HF&DC) avec le pourcentage d'O₂. ; b) Profil axial de la densité électronique d'une décharge à onde de surface cylindrique pour différents pourcentages d'O₂. Conditions opératoires :

1 Torr, $P_T = P_i - P_r = 10$ W (planaire) et 25 W (cylindrique), fraction de gaz réactifs = 15%.

Comme pour la fraction de gaz réactifs, une contraction de la décharge avec le pourcentage d' O_2 est à nouveau observée. Une étude réalisée par Espinho *et al.* [78] sur une décharge à onde de surface dans un mélange Ar- O_2 , suggère que la diminution de la densité électronique avec le pourcentage d' O_2 serait

due, en plus de la formation d'ions négatifs, à la perte énergétique dans le peuplement des états vibrationnels et rotationnels de la molécules d' O_2 par collisions électroniques.

La comparaison des rendements UV + Visible de décharge planaire hybride et de la décharge à onde de surface cylindrique dans un mélange $Ar-N_2/O_2$ en fonction de du pourcentage d' O_2 est présentée sur la figure 4.14.



Figure 4.14 Comparaison des rendement énergétique associés aux domaines de longueur d'onde UV + Visible de la décharge planaire hybride (HF&DC) et de la décharge à onde de surface cylindrique en fonction du pourcentage d'O₂. Conditions opératoires : 1 Torr, $P_T = P_i - P_r = 10$ W (planaire) et 15 W (cylindrique), fraction de gaz réactifs = 15%.

Pour les deux décharges, la figure 4.14 montre que le rendement énergétique associé à l'émission UV + Visible de la décharge ne fait que diminuer avec le pourcentage d'O₂. La figure 4.14 illustre le fait que l'utilisation d'O₂ dans la décharge ne présente, au final, pas de bénéfice énergétique pour l'émission UV + Visible.

Les évolutions des températures rotationnelle et vibrationnelle avec le pourcentage d' O_2 sont présentées sur les figures 4.15-a et 4.15-b respectivement pour une décharge planaire hybride et pour une décharge à onde de surface cylindrique.



Figure 4.15 Evolution des températures rotationnelle et vibrationnelle en fonction du pourcentage d'O₂ : a) décharge planaire hybride (HF&DC) ; b) décharge à onde de surface cylindrique. Conditions opératoires : 1 Torr, $P_T = P_i - P_r = 10$ W (planaire et cylindrique), fraction de gaz réactifs = 15 %.

Dans le cas de la décharge planaire hybride, les températures vibrationnelle et rotationnelle diminuent avec le pourcentage d'O₂. Cette diminution est moins importante que celle observée avec l'augmentation de la fraction de gaz réactifs car la concentration d'argon métastables diminuerait moins fortement (fraction de gaz réactifs fixe) et la contribution de la réaction 4.2 resterait donc importante. Comme avec la fraction de gaz réactifs, on observe pour le cas de la décharge à onde de surface cylindrique que les deux températures augmentent avec le pourcentage d'O₂. La contraction de la décharge associée (figure 4.13) pourrait également expliquer la tendance observée.

Les rendements énergétiques qui sont présentés dans cette section ont été déterminés lorsque soit la fraction de gaz réactifs, soit le pourcentage d'O₂ est fixe. L'ensemble des combinaisons possibles de mélanges ont également été testées (jusqu'à 45% pour la fraction de gaz réactifs et jusqu'à 50% pour le pourcentage d'O₂), et ce, pour différentes pressions allant de 250 mTorr à 5 Torr. Les résultats obtenus ont montré que la fraction de gaz réactifs qui maximise le rendement de production de photons UV + Visible est toujours proche de 10 % et que ce rendement ne fait que diminuer avec le pourcentage d'O₂.

Outre les rendements énergétiques relativement faibles, l'émission UV des décharges Ar-N₂/O₂ et Ar-N₂ est dispersée sur une gamme de longueurs d'onde large qui s'étend de 200 nm à 380 nm. La dispersion de l'émission UV fait de ces décharges des sources peu adaptées à l'élaboration d'une lampe fluorescente. En effet, la conversion d'un tel rayonnement UV en lumière visible serait complexe et surtout peu efficace en raison d'un décalage de stokes important (notamment pour l'émission du NO). On peut également noter que la contribution importante de l'IR dans l'émission représente un manque à gagner important puisqu'elle ne peut être convertie efficacement par des luminophores en lumière visible.

4.2 Etude des décharge réactives en mélange Ar-S₂

4.2.1 Etat de l'art des décharges au soufre

Compte tenu des limitations des performances observées avec la décharge en mélange Ar-N₂/O₂, on considère dans cette partie, la décharge de soufre pour la production de photons UV + Visible. Une application expérimentale connue du soufre dans l'éclairage est la lampe à décharge haute pression à cavité résonnante. Depuis 1992, ces lampes ont fait l'objet d'études approfondies en vue de leur utilisation dans l'éclairage courant [79]. Dans ces lampes à décharge hautes pression, le soufre est scellé dans une ampoule, elle-même placée dans la région de champ élevé d'une cavité micro-ondes. Pendant la phase d'allumage, les micro-ondes couplées à un gaz d'amorçage (généralement de l'argon) chauffent l'enveloppe de la lampe, vaporisent le soufre cristallin (solide à température ambiante) et le dissocient en molécules S₂ (en phase gazeuse) émettrices qui finissent ensuite par être excitées par les micro-ondes. Le flux spectral de cette lampe est présenté sur la figure 4.16.



Figure 4.16 Flux spectral d'une lampe à décharge de soufre haute pression [80].

Comme le montre la figure 4.16, l'émission de cette lampe est continue et englobe bien la courbe de sensibilité spectrale de l'œil (voir annexe 1). Les décharges de soufre à haute pression présentent, sans même l'utilisation de luminophores, une excellente restitution des couleurs. De plus, le rendement énergétique associé est très élevé (~ 70 %) et seuls quelques pourcents du flux énergétique total est émis dans l'infrarouge [80,81]. Etant donné qu'il n'y a pas d'électrodes et que la paroi en verre n'est pas affectée par le soufre, la durée de vie d'une telle lampe est estimée à plus de 60 000 heures contre 10 000 pour

un tube fluorescent. Cependant, l'utilisation de ces lampes dans l'éclairage est limitée au cas de fortes puissances et celles-ci restent peu adaptées à l'éclairage courant, notamment en raison de l'utilisation de pièces mobiles qui servent à homogénéiser le chauffage micro-onde dans l'ampoule. De plus, le temps de mise en équilibre de la lampe est long (jusqu'à quelques dizaines de secondes) à cause du temps nécessaire à la sublimation du soufre. Pour l'ensemble de ces facteurs, les applications des lampes à décharge de soufre haute pression restent limitées [82] et celles-ci n'ont jamais été commercialisées. On retrouve également le soufre dans des lampes expérimentales à décharge basse pression [17]. Ces décharges seraient plus adaptées à l'éclairage courant puisqu'elles ne nécessitent pas de fortes puissances, ni de pièces mobiles pour le chauffage des parois. A basses pressions, l'émission des décharges de soufre s'étend du domaine UV au Visible comme le montre la figure 4.17.



Figure 4.17 Spectre d'émission d'une lampe à décharge de soufre basse pression [17].

La figure 4.17 montre également que le spectre d'émission de la décharge est continu du domaine UV au Visible. À la différence de la décharge Ar-N₂/O₂, la décharge de soufre basse pression émet un rayonnement UV qui est plus proche du domaine du visible. Cette décharge pourrait donc être plus efficacement utilisée dans la conception d'une lampe fluorescente car elle offre, à travers une sélection adaptée de luminophores, des possibilités plus prometteuses en termes de conversion UV-Visible.

Du point de vue de l'émission, que ce soit à haute ou à basse pression, les décharges de soufre semblent assez bien adaptées aux applications d'éclairage. Néanmoins, la forte électronégativité du soufre le rend extrêmement corrosif à hautes températures [83]. Sous de telles conditions, des électrodes chaudes comme celles des tubes fluorescents seraient attaquées et détruites rapidement. En revanche, les décharges planaire hybride (HF&DC) et à onde de surface cylindrique qui s'affranchissent de

l'utilisation d'une cathode chaude, constituent des décharges basse pression adaptées à l'utilisation de soufre comme émetteur UV + Visible [84].

4.2.2 Caractéristiques d'une décharge Ar-S₂ à cathode HF à onde de surface cylindrique

On se propose d'étudier l'émission de nos décharges en mélange $Ar-S_2$ pour la production de photons UV + Visible. Le flux spectral typique d'une décharge à onde de surface cylindrique $Ar-S_2$, obtenue dans une configuration d'excitation externe (cf. figure 3.27-b), est présenté sur la figure 4.18.



Figure 4.18 Flux spectral d'une décharge à onde de surface cylindrique Ar-S₂. Conditions opératoires : pression partielle d'argon = 1 Torr, $P_T = P_i - P_r = 15$ W.

La majorité de l'émission UV et Visible de la décharge est fournie par le système $B^{3}\Sigma_{u}^{-} - X^{3}\Sigma_{g}^{-}$ de la molécule de S₂ qui s'étend de façon continue de 280 à 650 nm. Dans le domaine des UV plus lointains, on peut observer, de 240 à 280 nm, l'émission du système ($A^{1}\Pi - X^{1}\Sigma$) de la molécule de CS [85] qui est un contaminant formé par les impuretés carbonées présentes dans le dispositif. Enfin, l'argon avec le triplet du soufre atomique à 922 nm sont les seuls contributeurs de l'émission IR de la décharge.

Comme le soufre est un élément solide à température ambiante, il ne peut pas être injecté dans une enceinte par un débit de gaz. Dans le cas où la décharge $Ar-S_2$ est non-scellée (régime de pompage dynamique), c'est la température du gaz qui fixe localement la pression partielle des vapeurs de soufre et donc de la fraction de gaz réactifs du mélange. En disposant le soufre à proximité de la cathode,

celui-ci va donc se sublimer au contact de la décharge et ainsi contribuer à l'émission. La figure 4.19 montre la luminance spectrale de la décharge à onde de surface Ar-S₂ cylindrique mesurée à t = +5 s et t = +35 s après allumage pour une quantité de soufre de 10 mg. Les températures rotationnelles associées au système B-X de la molécule de S₂ sont également indiquées. Celles-ci ont été déterminées à l'aide de la méthode explicitée dans la section 2.3.2 du chapitre 2 et sont considérées ici comme un indicateur de la température du gaz. La luminance spectrale est présentée ici pour mieux illustrer, sur la même échelle, la variation de la répartition spectrale de l'émission de la décharge avec la température.



Figure 4.19 luminance spectrale de la décharge à onde de surface cylindrique Ar-S₂ : a) t = + 5 s ; b) t = + 35 s. Conditions opératoires : pression partielle d'argon = 1 Torr, $P_T = P_i - P_r = 15$ W.

La figure 4.19-a montre à t = + 5 s ($T_{rot} = 170^{\circ}C$) que la contribution du S₂ dans l'émission est largement minoritaire par rapport à celle de l'argon, tandis que l'effet inverse est observé à t = + 35 s (figure 4.19b), où la température du gaz est sensiblement plus élevée ($T_{rot} = 359^{\circ}C$). On peut d'ailleurs noter qu'aux faibles températures, l'émission du CS est déjà assez importante puisqu'elle est comparable à celle du S₂. L'évolution de la luminance spectrale de la décharge ainsi que sa valeur intégrée sur les domaines UV Visible et IR en fonction de la température rotationnelle sont représentées sur la figure 4.20.


Figure 4.20 a) Luminance spectrale de la décharge à onde de surface cylindrique Ar-S₂ pour différentes températures rotationnelles ; b) Evolution de la luminance énergétique de la décharge à onde de surface cylindrique Ar-S₂ en fonction de la température rotationnelle. Conditions opératoires : pression partielle d'argon = 1 Torr, $P_T = P_i - P_r = 15$ W.

La figure 4.20 indique que la contribution du S_2 à l'émission de la décharge augmente avec la température rotationnelle et donc avec la température du gaz et, à l'inverse, que la contribution de IR de l'argon diminue avec la température gaz. En effet, plus la température du gaz est élevée, plus la dissociation du soufre solide en molécules de S_8 , S_7 , S_6 , S_5 , S_4 , S_3 et S_2 (seule espèce émettrice) augmente. Ainsi, la concentration de molécules S_2 augmente et leur contribution à l'émission devient plus importante.

En régime dynamique, le soufre sublimé dans la décharge finit rapidement par condenser vers les zones froides, éloignées de la décharge. Dans de telles conditions, la décharge $Ar-S_2$ est donc instable et limitée dans le temps. Il apparait nécessaire à ce stade de recourir à l'utilisation d'une décharge scellée pour notre étude. Comme dans le cas des tubes fluorescents à mercure, l'idée est de placer une quantité en excès de soufre dans un tube scellé en phase condensée, c'est-à-dire à l'état solide ou liquide (selon la température des parois). Ainsi, la pression partielle de vapeurs de soufre dans le tube décharge correspond à la pression de vapeur saturante. Pour rappel, la pression de vapeur saturante d'un composé caractérise la pression d'équilibre entre la vapeur de ce composé et sa phase condensée (liquide ou solide) dans un système fermé. La pression de vapeur saturante dépend exclusivement de la température des parois ou plutôt de la température la plus froide de l'enceinte dans laquelle le gaz est enfermé. Par la suite, on appellera cette température, température de point froid. La figure 4.21 présente une comparaison de l'évolution de la pression de vapeur saturante de soufre et de mercure en fonction de la température de point froid dans une enceinte fermée.



Figure 4.21 Evolution de la pression de vapeur saturante du soufre $(S_{n<8})$ et du mercure (Hg) en fonction de la température de point froid [86].

Comme le montre la figure 4.21, environ 70°C supplémentaires sont nécessaires pour maintenir une pression de vapeur de soufre de 1 Torr par rapport au mercure (*i.e.* Hg : 120°C, S : 190°C). À température ambiante, le soufre est solide (cristallin) et les vapeurs de soufre sont principalement des composées de cyclooctasoufre (S₈) qui correspondent à sa forme allotropique la plus courante. Le soufre fond à 113 °C et, entre 120 et 210 °C, les vapeurs se composent uniquement de molécules S₈, S₇, S₆ et S₅. À 159 °C, le soufre subit un changement brutal de viscosité et les cycle de cyclooctasoufre S₈ s'ouvrent en chaînes linéaires, ce qui favorise la dissociation et la formation des molécules de S₂ [87]. Toutefois, même au-delà de cette température, la fraction molaire de S₂ dans les vapeurs de soufre reste relativement faible. En revanche, dans un environnement de décharge, les électrons favorisent davantage la dissociation en molécules S₂ et celles-ci peuvent devenir les contributeurs majoritaires de l'émission si la température du gaz est suffisamment élevée (figure 4.19-b).

4.2.3 Recherche de l'optimum de rendement de production de photons UV + Visible

Comme dans le cas de la décharge Ar- N_2/O_2 , l'objectif est de déterminer les proportions du mélange de gaz Ar- S_2 qui maximisent le rendement de production de photon UV + Visible. Comme évoqué dans la section précédente, le recours aux configurations scellées est essentiel pour obtenir la stabilité de la décharge en présence de soufre. En raison des limitations techniques, il ne nous a pas été possible d'entretenir la décharge dans un prototype en configuration planaire hybride (HF&DC) scellé. C'est pourquoi la décharge choisie pour cette étude est la décharge à onde de surface cylindrique car elle peut

être entretenue dans un tube scellé au moyen d'une cathode cylindrique dite externe. De plus, le plasma remplit entièrement le tube de décharge, ce qui permet un chauffage plus homogène des parois sur la zone de décharge. L'extrémité où se trouve la cathode étant plus chaude que l'extrémité opposée où se trouve le soufre en phase condensée, la pression partielle des vapeurs de soufre à l'intérieur du tube de décharge peut être facilement contrôlée par un thermostat (résistance chauffante) disposé à proximité de cette zone plus froide. La figure 4.22 présente le schéma du dispositif expérimental de la décharge à onde de surface Ar-S₂ avec thermostat.



Figure 4.22 a) Schéma du dispositif expérimental de la décharge à onde de surface Ar-S₂ thermostatée ;
b) Photo du dispositif expérimental de la décharge à onde de surface Ar-S₂ thermostatée.

Le scellement du tube de décharge est réalisé à l'aide d'une flamme acétylène-oxygène dont une petite partie des résidus carbonés sont parfois emprisonnés avec le soufre dans le tube, formant ainsi des espèces CS émettrices dans les UV lointains (figure 4.19). Pour limiter la contribution de ces impuretés à l'émission de la décharge, nous avons choisi de sceller, dans le tube de décharge, une quantité de soufre de 2 mg. Celle-ci est suffisamment élevée pour limiter la formation d'impuretés carbonées $(CS : A^{1}\Pi - X^{1}\Sigma)$ et sa forte contribution à l'émission UV (< 300 nm) par rapport à celle du S2. La puissance transmise à la décharge est fixée à 30 W et celle-ci est injectée par l'extrémité haute de tube scellé pour que le soufre condensé soit à proximité de la résistance chauffante (extrémité basse de la décharge). La longueur du tube de décharge scellé est relativement faible (60 mm) afin de limiter la puissance transmise nécessaire au maintien de la décharge en particulier aux hautes pressions de vapeurs de soufre. La résistance chauffante est reliée à un contrôleur qui permet un ajustement précis de la température des parois du tube. La température du point froid est égale à la température affichée par le contrôleur à quelques degrés près ; ceci ayant été préalablement validé par un modèle thermique développé sous COMSOL Multiphysics. Expérimentalement, la température de la résistance dans notre dispositif n'a pas dépassé les 230°C car la longueur de la décharge diminue avec l'augmentation de la température de point froid et, donc, de la pression de vapeurs de soufre (figure 4.23). Dans le cas où la décharge devient trop courte, la température des parois du tube entre la décharge et la résistance peut devenir inférieure à la température de la résistance elle-même. Comme le soufre condense à ce niveau légèrement plus froid (voir figure 4.23 à 230°C), on ne peut plus supposer que la température affichée par le contrôleur correspond à la température du point froid.



Figure 4.23 Photos de la décharge à onde de surface Ar-S₂ avec thermostat pour plusieurs températures du point froid.

La luminance énergétique et la longueur de la décharge Ar-S₂ avec thermostat en fonction de la température du point froid sont présentées sur les figures 4.24-a et 4.24-b respectivement. Pour se restreindre aux performances de la décharge Ar-S₂, l'émission UV des contaminants carbonés CS n'a pas été prise en compte dans le calcul des rendements énergétiques en limitant les bornes de mesure de la luminance spectrale à l'intervalle 275 - 1000 nm. Lorsque la température du point froid dépasse 100°C, la contribution du CS dans l'émission UV est déjà minoritaire face à celle du S₂ et celle-ci devient négligeable au-delà.



Figure 4.24 a) Evolution de la luminance énergétique de la décharge à onde de surface cylindrique Ar-S₂ avec thermostat en fonction de la température du point froid ; b) Evolution de la longueur de la décharge à onde de surface cylindrique Ar-S₂ avec thermostat en fonction de la température du point froid. Conditions opératoires : pression partielle d'argon = 1 Torr, $P_T = P_i - P_r = 30$ W.

Sur la figure 4.24, on observe que la luminance énergétique de la décharge intégrée sur les domaines UV et Visible augmente fortement jusqu'à 150°C, puis croit plus lentement au-delà de cette température. A 100°C, la contribution IR de l'argon dans l'émission est déjà minoritaire et disparait pratiquement après 150°C, ce qui constitue un avantage majeur sur le plan énergétique.

De façon analogue au cas du mélange Ar-N₂/O₂, la longueur de la décharge diminue (figure 4.24-b) mais, dans le cas présent, avec l'augmentation de la température du point froid qui induit la hausse de la pression du mélange et, par conséquence, la rétraction longitudinale du plasma. Dans ce fait, la puissance déposée par unité de longueur et la luminance énergétique (figure 4.24-a) augmentent avec l'augmentation de la pression des vapeurs de soufre. Pour avancer des hypothèses sur le comportement de la luminance, il était nécessaire de connaître au moins l'allure de la densité électronique en fonction de la pression (température du point froid). Malheureusement, la détermination de la densité n'a pas était possible en raison de la longueur de décharge trop petite pour pourvoir en déterminer le coefficient de propagation β (voir section 2.2.4).

L'évolution du rendement énergétique de la décharge à onde de surface cylindrique $Ar-S_2$ en fonction de la température du point froid est présentée sur la figure 4.25-a, et en fonction de la pression sur la figure 4.25-b, compte tenu de la relation entre ces deux grandeurs (cf. figure 4.21).



Figure 4.25 a) Evolution du rendement énergétique de la décharge à onde de surface cylindrique Ar-S₂ avec thermostat en fonction de la : a) température du point froid ; b) pression de vapeurs de soufre. Conditions opératoires : pression partielle d'argon = 1 Torr, $P_T = P_i - P_r = 30$ W.

Le rendement énergétique de la décharge atteint un optimum pour une température du point froid de 160 °C (*i.e.*, pression partielle de vapeur de soufre = 200 mTorr). Aux températures de point froid plus

élevées, la diminution de la longueur de décharge n'est plus contrebalancée par l'augmentation de la luminance énergétique (plus légère au-delà de 160 °C) et le rendement énergétique diminue.

La pression de vapeur d'environ 200 mTorr correspond, pour une pression initiale d'argon de 1 Torr, à une fraction de gaz réactifs de 20 %. La fraction de gaz réactifs qui optimise le rendement UV + Visible de la décharge Ar-S₂ est donc comparable à celle qui optimise le rendement UV + Visible de la décharge Ar-N₂/O₂ (15%). Toutefois, dans le cas du soufre, la pression partielle du S₂ (émetteur UV + Visible) ne constitue qu'une petite partie de la fraction de gaz réactifs totale qui contient majoritairement des espèces S_n non émettrices. D'après la référence [87], bien qu'il ne s'agisse pas d'un environnement de décharge, il est possible que la fraction de gaz réactifs effective de l'émetteur UV + Visible (S₂) soit de l'ordre de 1 % par rapports aux autres espèces non émettrices S₈, S₇, S₆, S₅, S₄ et S₃.

La figure 4.26 présente l'évolution du rendement de la décharge en fonction de la pression de vapeur de soufre pour différentes pressions initiales d'argon. Lorsque la pression initiale d'argon devient trop faible (< 0,5 Torr) la présence des impuretés CS dans le tube empêche l'amorçage. Pour cette raison, les pressions partielles d'argon inférieures à 500 mTorr n'ont pas pu être explorées.



Figure 4.26 Evolution du rendement énergétique de la décharge à onde de surface Ar-S₂ avec thermostat en fonction de la pression de vapeur de soufre pour différentes pressions partielles d'argon. Conditions opératoires : $P_T = P_i - P_r = 30$ W.

Les rendements énergétiques présentés sur la figure 4.26 montrent que les faibles pressions partielles d'argon favorisent le rendement énergétique de la décharge Ar-S₂. Ce comportement est également observé dans le cas d'une décharge DC pulsée où l'intensité de l'émission du système $B^3\Sigma - X^3\Sigma$ de la molécule de S₂ diminue avec l'augmentation de la pression partielle d'argon [88]. Cette diminution

pourrait être expliquée par la relaxation vibrationnelle des états excités $S_2(B)$ suite aux collisions avec les métastables de l'argon [89] :

$$S_2[B^3\Sigma_u^-(v')] + Ar \,({}^3P_2) \to S_2[B^3\Sigma_u^-(v'-1)] + Ar \,({}^3P_2). \tag{4.6}$$

Pour pouvoir le confirmer, il conviendrait ici aussi, d'établir un modèle complet de la décharge en incluant l'ensemble des réactions de dissociation avec l'argon pouvant amener à la formation d'états excités $S_2(B)$. La figure 4.26 montre que la pression de vapeur de soufre optimale (maximum des courbes) augmente lorsque la pression partielle d'argon diminue. Dans le cas d'une pression partielle d'argon de 5 Torr, l'optimum de pression de vapeur se situe aux alentours de 250 mTorr tandis qu'il se situe respectivement à 500 et 750 mTorr pour le cas de pression partielle d'argon de 1 et 500 mTorr. En conclusion, les proportions de gaz qui maximisent le rendement de production de photons UV + Visible de la décharge Ar-S₂ se situerait pour la pression des vapeurs de soufre autour de 250 mTorr. Une pression partielle d'argon minimale est à favoriser pour en obtenir un maximum de rendement énergétique à condition que celle-ci soit suffisante pour un amorçage facile de la décharge.

4.3 Conception du prototype de lampe

4.3.1 Description des luminophores et méthode de conception pour la décharge Ar-S₂

Compte tenu de sa répartition spectrale ainsi que de ses performances énergétiques, nous avons choisi de nous baser sur l'émission de la décharge à onde de surface cylindrique $Ar-S_2$ pour l'élaboration de notre prototype final de lampe fluorescente. Cette section présente les travaux réalisés en vue de sa conception via l'utilisation de film fluorescents chargés en luminophores et adaptés à l'émission de la décharge $Ar-S_2$. Les choix ainsi que l'optimisation des mélanges de luminophores ont été réalisés par un laboratoire partenaire du projet ADELINE, l'ICCF (Clermont Auvergne INP) de Clermont Ferrand. On distingue deux catégories de luminophores, les luminophores Visible (à faible décalage de Stokes) dont l'absorption est essentiellement dans le domaine du Visible, et les luminophores UV (à fort décalage de Stokes) dont l'absorption est essentiellement dans le domaine UV (parfois UV + Visible) et qui étaient largement utilisés dans les tubes fluorescents (figure 4.27-a). L'explosion de l'éclairage LED au profit des tubes fluorescents a conduit à la recherche et au développement de nouveaux luminophores plus appropriés à une excitation LED GaN, qui émet une lumière bleue (figure 4.27-b). Comme ces luminophores présentent une forte absorption dans le domaine visible (principalement le bleu), ils possèdent une couleur vive allant du jaune à l'orange (figure 4.27-b). Combinée à l'émission

bleue de la puce, l'émission du luminophore (matrice $Y_3Al_5O_{12}$ dopé Ce^{3+}) permet à la lampe LED d'atteindre des performances photométriques élevées.



Figure 4.27 Flux spectral de lampe : a) Tube fluorescent ; b) Tube LED.

Dans les tubes fluorescents, les luminophores qui servent à la conversion UV-Visible sont parfois fondus dans le tube de la lampe ou, le plus souvent, simplement disposés sous forme de poudres sur sa face intérieure [90].

Dans le cadre de notre étude, pour faciliter la mesure des performances des luminophores disposés autour de la décharge Ar-S₂, ceux-ci sont mélangés avec un polymère de base silicone bi-composant optiquement transparent, puis assemblés en films de faibles épaisseurs (100 à 200 μ m). La base en silicone qui sert de support possède une transmission de 98 % sur les domaines Visible et IR, et de 96 % dans le domaine UV (entre 250 et 380 nm). Les films sont ensuite simplement disposés autour d'un tube support en quartz (Ø21 mm extérieur) qui entoure le tube de décharge comme représenté sur la figure 4.28.

Chapitre 4. Étude des décharges réactives pour la conception de lampe fluorescente



Figure 4.28 Dispositif expérimental de caractérisation radiométrique et photométrique de la décharge Ar-S₂ couverte par un film chargé en luminophores.

Compte tenu de la transmission du quartz (pour une épaisseur traversée de 2 mm), on estime que dans le domaine UV, environ 95% du rayonnement atteint l'extérieur du film si celui-ci est non chargé en luminophores. On définit le taux de charge d'un film comme la fraction massique de luminophores qui composent ce film. Le taux de charge d'un film ne peut excéder 60% (le film doit donc être composé au minimum de 40% de silicone) pour conserver les propriétés de flexibilité et de protection du polymère. Pour limiter les pertes UV, on se propose de fixer le taux de charge au plus proche du maximum, c'est-à-dire de l'ordre de $60\% \pm 5\%$. Le paramètre naturel qui s'impose ensuite est donc l'épaisseur du film. La figure 4.29-a présente les flux spectraux de la décharge Ar-S₂ couverte par différentes épaisseurs de film chargé à 60% par un mélange de luminophores test et la figure 4.29-b présente les flux énergétiques correspondants.



Figure 4.29 a) Flux spectral de la décharge Ar-S₂ couverte par des films de différentes épaisseurs chargés par un mélange de luminophores test ; b) Flux énergétique de la décharge Ar-S₂ en fonction de l'épaisseur du film qui la recouvre.

La figure 4.29-a montre que le flux spectral diminue fortement entre la décharge seule (courbe noir) et la décharge avec films chargés (tracés en couleur). Ceci est dû à la conversion de l'émission UV de la décharge vers le domaine du visible qui est, pour rappel, une conversion à pertes (section 1.1.4). Plus l'épaisseur du film est élevée et plus la puissance rayonnée par la décharge avec film diminue (figure 4.29-b). Lorsque l'épaisseur du film est inférieure à 65 μ m, une partie du rayonnement UV du S₂ s'échappe du film sans être converti, tandis que pour des épaisseurs égales à 65 μ m, la quasi-totalité du rayonnement UV de la décharge Ar-S₂ est convertie. Pour des épaisseurs de film encore plus grandes (90 μ m), on observe que le flux spectral diminue encore, ce qui serait dû aux pertes d'émission visible dans l'épaisseur optique du film et dans la réflexion interne du dispositif. En effet, lorsque la quantité de luminophores traversée par un rayonnement UV est trop élevée, les pertes visibles du film peuvent prendre « le dessus » sur la conversion et il en résulte une diminution du flux émis. Pour chaque film fluorescent, présenté dans cette section, une épaisseur minimale mais suffisante sera choisie pour convertir, quand c'est possible, l'intégralité du rayonnement UV de la décharge Ar-S₂.

Les caractérisations de la décharge $Ar-S_2$ avec films fluorescents visent à déterminer les combinaisons de luminophores et leurs proportions qui optimisent à la fois le rendement de conversion/transmission et l'efficacité lumineuse du rayonnement. Bien entendu, l'IRC ainsi que la température de couleur sont également présentés en complément dans les sections suivantes. La liste de différents luminophores utilisés pour la conception de ces films est donnée dans le tableau 4.1. Les longueurs d'onde sur lesquelles leurs absorptions et leurs émissions sont centrées, ainsi que les largeurs de bande associées sont également données.

Les courbes d'émission et d'absorption associées à ces luminophores sont données dans l'annexe 5.

Matrice	Ion	Absorption	Emission	Couleur
cristalline	dopant			
BaMgAl ₁₀ O ₁₇	Eu ²⁺	325 nm ($\Delta\lambda = 37$ nm)	450 nm ($\Delta\lambda = 52$ nm)	Bleue
Lu ₃ Al ₅ O ₁₂	Ce ³⁺	340,450 nm ($\Delta\lambda = 41$ nm)	524 nm ($\Delta\lambda = 96$ nm)	Vert
ZnS	$\mathrm{Al}^{3+},\mathrm{Cu}^{+}$	345 nm ($\Delta\lambda = 98$ nm)	530 nm ($\Delta\lambda = 80$ nm)	Vert
SiAlON	Eu ²⁺	415 nm ($\Delta\lambda = 209$ nm)	544 nm ($\Delta\lambda = 55$ nm)	Vert
La ₃ Si ₆ N ₁₁	Ce ³⁺	425 nm ($\Delta\lambda = 194$ nm)	536 nm ($\Delta\lambda = 106$ nm)	Jaune
Y_2O_2S	Eu ³⁺	340 nm ($\Delta\lambda = 105$ nm)	626 nm ($\Delta\lambda = 2$ nm)	Rouge
SrAlSiN ₃	Eu ²⁺	420 nm ($\Delta\lambda = 203$ nm)	621 nm ($\Delta\lambda = 74$ nm)	Rouge

Chapitre 4. Étude des décharges réactives pour la conception de lampe fluorescente

Tableau 4.1 Liste des différents luminophores utilisés pour la conception de film fluorescents.

Pour les résultats présentés dans la section suivante, nous essaierons de nous placer au niveau de la décharge à onde de surface cylindrique $Ar-S_2$ dans les conditions, notamment de température de point froid, qui maximisent le rendement énergétique UV + Visible (*i.e.*, 160°C). Bien entendu, nous veillerons à ce que l'émission de la décharge $Ar-S_2$ soit la plus reproductible possible sans quoi, la comparaison des différents films testés ne peut être effectuée.

4.3.2 Couches de luminophores Visible

Pour des raisons de disponibilité de matériaux, la première piste envisagée pour la conversion de l'émission UV + Visible de la décharge Ar-S₂ a été de concevoir un film par un empilement de fine couche (50 μ m) chacune chargée par un seul luminophore Visible comme présenté sur la figure 4.30.



Figure 4.30 Schéma représentant un film fluorescent conçus en couches : a) film à 4 couches (voir films 1 et 2 du tableau 4.2) ; b) film à 3 couches (film 3 du tableau 4.2).

Lorsque le film est conçu en couches, la couche chargée en luminophore rouge est disposée au plus proche de la décharge. Les couches chargées en luminophores verts et/ou jaunes (émission de longueurs d'ondes plus courtes) sont ensuite disposées sur la couche de luminophores rouges. Ces premières couches absorbent le rayonnement visible (380 à 450 nm) de la décharge $Ar-S_2$ et le convertissent dans les longueurs d'onde vertes jaunes et rouges (500 à 750 nm). Pour l'émission bleue, un dernier film chargé en luminophore absorbant dans les UV, est disposé sur la couche verte. Le tableau 4.2 présente les compositions de 3 films conçus en couches. Les films 1 et 2 correspondent à une superposition de 4 couches (rouge, 2 vertes et 1 bleue) et le film 3 correspond à une superposition de 3 couches (rouge, jaune et bleue). Pour faciliter la conception des films, l'épaisseur de la couche a été fixée à 50 µm et le taux de charge a été utilisé pour moduler les proportions de luminophores qui la composent. Les luminophores choisis pour chacune des couches, ainsi que le taux de charge en % par couche sont indiqués dans le tableau 4.2. La composition des différents films a été choisie en première approche à l'aide d'outils de simulation pour viser une émission dont les températures de couleurs seraient comprises entre 2000 et 6000 K. Pour le prototype de lampe final, une température de 4000 K est visée ce qui correspond au standard des lampes fluorescentes.

	Luminophore bleu	Luminophore vert	Luminophore	Luminophore
			jaune	rouge
Film 1	BaMgAl ₁₀ O ₁₇ (Eu ²⁺) :	• Lu ₃ Al ₅ O ₁₂ (Ce ³⁺) : 30%		SrAlSiN ₃ (Eu ²⁺) :
(200 µm)	50%	• SiAlON (Eu ²⁺) : 20%		34%
Film 2	BaMgAl ₁₀ O ₁₇ (Eu ²⁺) :	• Lu ₃ Al ₅ O ₁₂ (Ce ^{$3+$}) : 22%		SrAlSiN ₃ (Eu ²⁺) :
(200 µm)	13%	• SiAlON (Eu ²⁺) : 10%		50%
Film 3	BaMgAl ₁₀ O ₁₇ (Eu ²⁺) :		$La_3Si_6N_{11}$	SrAlSiN ₃ (Eu ²⁺) :
(150 µm)	50%		(Ce^{3+}) : 17%	4%

Tableau 4.2 Compositions en taux de charge massique des films fluorescents 1,2 et 3.

La figure 4.31 présente les flux spectraux de la décharge $Ar-S_2$ couverte par les 3 films listés dans le tableau 4.2.



Figure 4.31 a) Flux spectral de la décharge à onde de surface cylindrique $Ar-S_2$ couverte par les films fluorescents 1,2 et 3 b) Photos de la décharge à onde de surface cylindrique $Ar-S_2$ couverte par les films fluorescents 1, 2 et 3.

Les efficacités lumineuses du rayonnement, les IRC, les températures de couleur, ainsi que les rendements de conversion/transmission associés aux films 1, 2 et 3 sont donnés dans le tableau 4.3.

	r _r	IRC (Ra)	ССТ	r _c
Film 1 (200 µm)	259 lmW ⁻¹	84	3200 K	20,5 %
Film 2 (200 µm)	246 lmW ⁻¹	71	2050 K	22,4 %
Film 3 (200 µm)	219 lmW ⁻¹		> 18 000 K	25,4 %

Tableau 4.3 Caractéristiques photométriques et rendement de conversion/transmission de la déchargeà onde de surface cylindrique Ar-S2 couverte par les films fluorescents 1,2 et 3.

La figure 4.31 montre pour les 3 films, que la conversion UV-Visible n'est pas complète puisqu'une partie importante du rayonnement UV de la décharge Ar-S₂ est transmise sans avoir été convertie. Cet effet est particulièrement important dans le cas du film 2 et s'explique, entre autres, par le faible taux de charge de la couche bleue qui est la seule à contenir un luminophore absorbant dans l'UV. Le taux de charge élevée de la couche rouge du film 1 permet d'atteindre, malgré une présence importante de rayonnement UV, un IRC ainsi qu'une température de couleur bien adaptée à l'éclairage domestique (standard = 2700 K). Le rendement de conversion/transmission est relativement faible mais reste

comparable à celui des tubes fluorescents (36 %). Pour le film 2, la couche de luminophores rouge possède un taux de charge très élevé en comparaison des autres couches, ce qui se traduit visuellement par une lumière très orangée et donc une température de couleur très chaude (2050 K). Enfin, le film 3 composé de seulement trois couches présente un rendement de conversion/transmission légèrement plus élevé que ceux des films 1 et 2. Cependant, le manque de couleurs rouge de son émission donne une teinte extrêmement bleutée à la lumière émise. Ceci se traduit du point de vue colorimétrique par une température de couleur élevée. Au final, les émissions des films 2 et 3 sont donc assez peu adaptées à l'éclairage courant.

Bien que les performances du film 1 soient correctes pour de tels revêtements fluorescents, la méthode par couche reste problématique du point de vue de la conversion car une émission intense dans le bleu est inévitable si l'on souhaite convertir l'ensemble du rayonnement UV de la décharge. Les limites de la méthode de couches de luminophores Visible montrent que le recours aux luminophores UV (vert et rouge) semble indispensable pour une meilleure conversion UV-Visible de l'émission de la décharge $Ar-S_2$.

4.3.3 Mélange de luminophores UV et Visible, choix et composition

La seconde piste envisagée pour la conversion UV-Visible de la décharge $Ar-S_2$ consiste à considérer non pas des couches mais simplement un mélange de plusieurs luminophores Visible et/ou UV dans un même film fluorescent. Les 3 mélanges réalisés et leurs proportions de luminophores associées sont présentés dans le tableau 4.4 :

	Luminophore bleu	Luminophore vert	Luminophore	Luminophore
			jaune	rouge
Film 4	BaMgAl ₁₀ O ₁₇ (Eu ²⁺) :	• $Lu_3Al_5O_{12}(Ce^{3+})$: 10%		SrAlSiN ₃ (Eu ²⁺) :
(100 µm, ~60 %)	35%	• SiAlON (Eu ²⁺) : 12%		3%
Film 5	BaMgAl ₁₀ O ₁₇ (Eu ²⁺) :		$La_3Si_6N_{11}$	SrAlSiN ₃ (Eu ²⁺) :
(100 µm, ~60 %)	45%		(Ce^{3+}) : 15%	3%
Film 6	BaMgAl ₁₀ O ₁₇ (Eu ²⁺) :	ZnS (Al^{3+}, Cu^{+}) : 25%		Y_2O_2S (Eu ³⁺) :
(100 µm, ~40 %)	5%			20 %

Tableau 4.4 Compositions en taux de charge massique par couche pour les films fluorescents 4,5 et 6.

Les films 4 et 5 correspondent aux équivalents des films 1 et 2 de la section précédente où les luminophores sont, cette fois, mélangés dans le même film. Le film 6 correspond à un mélange de trois

luminophores UV. Les flux spectraux de la décharge $Ar-S_2$ couverte par ces trois films, sont présentés sur la figure 4.32.



Figure 4.32 Flux spectral de la décharge à onde de surface cylindrique Ar-S₂ couverte par les films fluorescents 4, 5 et 6. b) Photos de la décharge à onde de surface cylindrique Ar-S₂ couverte par les films fluorescents 4, 5 et 6.

Les efficacités lumineuses du rayonnement, les IRC, les températures de couleur, ainsi que les rendements de conversion/transmission associés aux films 4, 5 et 6 sont donnés dans le tableau 4.5.

	rr	IRC (Ra)	ССТ	r _c
Film 4 (100 µm, ~60 %)	288 lmW ⁻¹	84	7150 K	22,5 %
Film 5 (100 µm, ~60 %)	355 lmW ⁻¹	66	5900 K	21,4 %
Film 6 (100 µm, ~50 %)	339 lmW ⁻¹	82	5900 K	13,2 %

Tableau 4.5 Caractéristiques photométriques et rendement de conversion/transmission de la déchargeà onde de surface cylindrique Ar-S2 couverte par les films fluorescents 4,5 et 6.

La figure 4.32-a indique que pour le film 4, le problème de la conversion UV-Visible se pose à nouveau. En effet, la concentration de luminophore bleu (seul luminophore UV) est insuffisante pour convertir l'intégralité du rayonnement UV de la décharge Ar-S₂. Dans le cas du film 5, une meilleure conversion UV est observée. Celle-ci est expliquée par un taux de charge plus élevé de luminophore bleu, mais aussi par la présence du luminophore jaune qui possède aussi une absorption relativement importante dans l'UV. L'IRC mesuré pour le film 5 est médiocre et cette valeur pourrait être expliquée par l'absence de luminophore vert. Comme les films 4 et 5 sont composés d'un mélange de luminophore Visible, ces deux films sont sujets à une forte auto-absorption (absorption de l'émission bleue du BaMgAl₁₀O₁₇ (Eu²⁺) par les autres luminophores Visible) [91]. Cette propriété rend le contrôle des propriétés de la lumière émise extrêmement complexe. Dans le cas du film 6 où des luminophores UV ont été utilisés, on observe que la conversion UV-Visible est totale et que l'IRC est satisfaisant. Ces performances sont expliquées notamment par une émission rouge plus importante permise par le luminophore Y_2O_2S (Ce³⁺). Pour ce qui est de la température de couleur, celle-ci est assez froide puisqu'on observe un écart d'environ 2000 K par rapport au standard des tubes fluorescents à 4000 K. On notera également une diminution du rendement de conversion/transmission d'un facteur 2 par rapport au cas des films 4 et 5, que l'on attribue aux pertes d'émission visible (notamment de la décharge) dans l'épaisseur du film et dans la réflexion interne du dispositif.

Considérons à présent plus en détail le cas du film 6, c'est-à-dire d'un film chargé par un mélange de 3 luminophores UV (*i.e.*, BaMgAl₁₀O₁₇ (Eu²⁺), ZnS (Al³⁺, Cu⁺), Y₂O₂S (Ce³⁺)). L'émission de la décharge Ar-S₂ entourée par des films chargés individuellement par chacun de ces luminophores est donnée dans l'annexe 6. En modulant les proportions des 3 luminophores dans le même film, les propriétés photométriques de son émission peuvent être optimisées. Les 4 compostions de films (de 6 à 9) chargés en luminophores BaMgAl₁₀O₁₇ (Eu²⁺), ZnS (Al³⁺, Cu⁺) et Y₂O₂S (Ce³⁺) testés sont présentées dans le tableau 4.6.

	Luminophore bleu	Luminophore vert	Luminophore rouge
Film 6	BaMgAl ₁₀ O ₁₇ (Eu ²⁺) :	ZnS (Al^{3+}, Cu^{+}) :	$Y_2O_2S (Eu^{3+})$:
(100 µm, ~50 %)	5%	25%	20%
Film 7	BaMgAl ₁₀ O ₁₇ (Eu ²⁺) :	ZnS (Al ³⁺ , Cu ⁺) :	Y_2O_2S (Eu ³⁺):
(100 µm, ~50 %)	1,3%	21,3%	27,4
Film 8	BaMgAl ₁₀ O ₁₇ (Eu ²⁺) :	ZnS (Al ³⁺ , Cu ⁺) :	Y_2O_2S (Eu ³⁺):
(100 µm, ~40 %)	1%	17%	22%
Film 9	BaMgAl ₁₀ O ₁₇ (Eu ²⁺) :	ZnS (Al ³⁺ , Cu ⁺):	Y_2O_2S (Eu ³⁺):
(100 µm, ~50 %)	1,5%	16,5%	33%

Tableau 4.6 Compositions en taux de charge massique des films fluorescents 6, 7, 8 et 9.

Les films 6 à 9 sont tous légèrement chargés en luminophore bleu (BaMgAl₁₀O₁₇ (Eu²⁺)) car l'émission bleue est fournie en grande partie par l'émission visible de la décharge Ar-S₂. Toutefois, une légère contribution de ce luminophore reste nécessaire pour compléter visuellement l'émission bleue (figure 4.18).

Les flux spectraux de la décharge Ar-S₂ couverte par les films 6 à 9 sont présentés sur la figure 4.33.



Figure 4.33 Flux spectral de la décharge à onde de surface cylindrique Ar-S₂ couverte par les revêtements fluorescents 6, 7, 8 et 9.

Les efficacités lumineuses du rayonnement, les IRC, les températures de couleur, ainsi que les rendements de conversion/transmission associés aux films 6,7,8 et 9 sont donnés dans le tableau 4.7.

	r _r	IRC (Ra)	ССТ	r _c
Film 6 (100 µm, ~50 %)	339 lmW ⁻¹	82	5900 K	13,2 %
Film 7 (100 µm, ~50 %)	319 lmW ⁻¹	89	4900 K	12,1 %
Film 8 (100 µm, ~40 %)	305 lmW ⁻¹	91	5400 K	14,3 %
Film 9 (100 µm, ~50 %)	300 lmW ⁻¹	81	4200 K	10,9 %

Tableau 4.7 Caractéristiques photométriques et rendement de conversion/transmission de la déchargeà onde de surface cylindrique Ar-S2 couverte par les films fluorescents 6, 7, 8 et 9.

Les faibles rendements de conversion/transmission observés pour les films 6, 7 et 8 et 9 seraient expliqués par d'importantes pertes visibles dans l'épaisseur optique du film ainsi que dans la réflexion interne du dispositif. Malheureusement, comme la décharge $Ar-S_2$ émet à hauteur de 25% dans le domaine du visible, ces pertes sont d'autant plus importantes. Le film 8 semble proposer les meilleures performances, ce qui est expliqué entre autres, par son taux de charge plus faible que les films 6, 7 et 9. On observe également pour le film 8 que l'émission bleue est intense malgré son faible chargement en luminophores bleus. Comme le film est moins chargé, l'émission visible de la décharge traverse plus facilement son épaisseur. Le film 6 est assez fortement chargé en luminophore vert, ce qui se traduit du point de vue photométrique par une efficacité lumineuse légèrement plus élevée car la contribution du vert dans la vision humaine est importante (voir annexe 1). Le film 6 est également peu chargé en luminophores rouges et présente donc une température de couleur élevée (5900 K) en raison de la contribution importante de son émission bleue par rapport à l'émission verte et rouge des autres luminophores. A l'inverse, le film 9 qui est plus fortement chargé en luminophore rouge présente une température plus faible de l'ordre de 4200 K, proche de notre objectif. Ce même film présente le rendement de conversion le plus faible, ce qui pourrait être expliqué par deux effets : i) les pertes par décalage de Stokes liées à la charge élevée de luminophores rouges ii) la diminution de la charge en luminophores verts dont l'absorption visible diminue légèrement les pertes visibles de la décharge dans l'épaisseur du film.

Les films 6, 7, 8 et 9 présentent tous des propriétés photométriques intéressantes pour l'éclairage courant avec des températures de couleur comprises entre 4000 et 6000 K. Compte tenu des performances observées, on retiendra le film 7 pour les caractérisations du prototype final de lampe à décharge Ar-S₂. Ce film présente un bon compromis entre rendement de conversion et propriétés photométriques proches des tubes fluorescents standards.

4.3.4 Caractérisation du prototype final de lampe

Pour valider les performances du prototype final que nous avons déterminé avec la méthode approchée, le flux énergétique a également été déterminé à l'aide de la méthode intégratrice. Comme nous l'avons évoqué dans le chapitre 2, la méthode intégratrice est plus directe puisqu'elle se base sur l'utilisation d'une sphère d'intégration, ce qui évite de supposer que l'émission est lambertienne. Nous considérons ici notre prototype final de lampe qui correspond à une décharge à onde de surface cylindrique Ar-S₂ (T_{point-froid} = 160°C) couverte par le film 7 (voir section 4.3.3). La figure 4.34 présente la comparaison des flux spectraux du prototype final, déterminés avec la méthode approchée (en noir) et avec la méthode intégratrice (en rouge).



Figure 4.34 Comparaison du flux spectral du prototype final, déterminé avec la méthode approchée et avec la méthode intégratrice.

Comme on peut le constater sur la figure 4.34-a, les flux spectraux déterminés à l'aide des deux méthodes sont proches avec toutefois un écart non négligeable de l'ordre de 10%. Cet écart est expliqué en grande partie, par les fluctuations de la décharge $Ar-S_2$ dans le temps. A ce stade, on ne peut donc pas affirmer si dans notre cas, la méthode approchée surestime ou sous-estime le flux énergétique du prototype final. Toutefois, on peut confirmer que les flux spectraux ainsi que les rendements énergétiques et de conversion/transmission déterminés à l'aide de cette méthode sont correctement établis avec une incertitude de l'ordre de 10%.

Afin d'évaluer l'uniformité de l'éclairage du prototype final, un vidéo-colorimètre a été utilisé pour réaliser une cartographie de luminance visuelle. Les différentes cartographies ainsi que les photos correspondantes de la décharge Ar-S₂ sans film et du prototype final sont présentés sur la figure 4.35. La cartographie du logarithme de la luminance visuelle est également présentée car elle retranscrit mieux la perception visuelle de notre source (loi de Weber Fechner) [92]. La luminance visuelle de la décharge Ar-S₂ sans film présentée sur les figures 4.35-a et 4.36 n'a pas vraiment de sens physique puisqu'une partie importante de cette émission est non visible. Toutefois, on peut la considérer comme un indicateur du flux rayonné localement par la décharge.



Figure 4.35 a) Cartographie de la luminance visuelle de la décharge cylindrique Ar-S₂ sans film fluorescent ; b) Cartographie du logarithme de la luminance visuelle de la décharge cylindrique Ar-S₂ sans film fluorescent ; c) Photo de la décharge cylindrique Ar-S₂ sans film fluorescent ;
d) Cartographie de la luminance visuelle du prototype final ; e) Cartographie du logarithme de la luminance visuelle du prototype final ; d) Photo du prototype final.

Les profils axiaux et radiaux de la luminance et du logarithme de la luminance qui correspondent à la figure 4.35 sont présentés sur la figure 4.36. Les lignes de coupes sont indiquées sur les figures 4.35-c et 4.35-f.





Les figures 4.35 et 4.36 montrent que dans le cas où la décharge n'est pas couverte par un film fluorescent, l'émission est déjà relativement homogène. En effet, pour la luminance, on observe que le profil ne fait que décroitre légèrement le long de l'axe de la décharge et il est quasiment constant radialement. Dans le cas avec film fluorescent (prototype final), on observe également que le profil radial de l'émission est lui aussi relativement constant. Cependant, on note une assez forte variation de l'émission le long de l'axe qui présente un maximum pour z = 20 mm. En effet, au niveau de la fin de colonne de la décharge (z = 42 mm), la luminance visuelle du film est diminuée de moitié par rapport au maximum. Ce profil est expliqué par la diffusion de l'émission de la décharge Ar-S₂ sur le film, qui est réduite au début et à la fin de colonne comme schématisé sur la figure 4.37-a. Comme la décharge est relativement courte, cet effet est d'autant plus marqué.



Figure 4.37 a) Schéma représentant la diffusion de l'émission de la décharge Ar-S₂ couverte par un film fluorescent ; b) Photo du prototype final.

En termes de sensation visuelle, on observe que la décharge $Ar-S_2$, qu'elle soit couverte ou non, est parfaitement homogène. Ceci montre que les variations de luminance illustrées sur la figure 4.36 ne sont pas perceptibles et, de ce fait, l'homogénéité de l'émission du prototype final est très satisfaisante. La taille relativement réduite de la décharge $Ar-S_2$ laisse entrevoir une lampe de type bulbe plutôt que de type tubulaire. Des décharges plus longues (*i.e.* plus fortes puissances) pourraient également être envisagées, mais n'ont pas pu être mises en place pour des raisons de contraintes techniques.

Nous avons vu dans la section précédente que l'efficacité lumineuse du rayonnement du prototype final atteint 320 lmW⁻¹ avec un rendement de conversion/transmission de l'ordre de 12 %. En prenant en compte le rendement énergétique de la décharge à onde de surface cylindrique Ar-S₂ qui atteint pour les faibles pressions partielles d'argon un peu moins de 4%, nous arrivons à une efficacité de lampe de seulement 1,5 lmW⁻¹ contre 90 lmW⁻¹ pour les tubes fluorescents et 150 lmW⁻¹ pour les LED. En supposant que le film atteigne les performances de la couche de luminophores utilisée dans les tubes fluorescents (*i.e.*, $r_c = 36$ %) et en considérant que les pertes de puissance HF soient nulles (*i.e.* $r_e = 8$ %), nous arrivons à une efficacité lumineuse de l'ordre de 10 lmW⁻¹. La comparaison des performances de notre prototype final avec sa version hypothétiquement améliorée ainsi qu'avec un tube fluorescent est donnée dans le tableau 4.8.

	r _e	r _c	r _r	η_1	IRC (Ra)	CCT
Prototype final	4 %	12 %	320 lmW ⁻¹	1,5 lmW ⁻¹	89	4900 K
Prototype final (amélioré)	8 %	36 %	320 lmW ⁻¹	10 lmW ⁻¹	> 80	4000 K
Tube fluorescent	66 %	33 %	323 lmW ⁻¹	90 lmW ⁻¹	85	4000 K

Tableau 4.8 Tableau récapitulatif des performances du prototype final.

L'efficacité lumineuse réduite de notre prototype final s'explique en majeure partie, par le faible rendement énergétique de la décharge $Ar-S_2$ qui est près de 8 fois inférieur à celui des décharges au mercure (66 %). L'utilisation de soufre pour l'émission UV + Visible est trop couteuse en énergie car les pertes énergétiques dans la dissociation moléculaire sont très importantes. De plus, l'efficacité de la conversion/transmission du rayonnement UV + Visible de la décharge est, elle aussi, relativement réduite car les pertes visibles dans l'épaisseur du film et dans la réflexion interne du dispositif, sont importantes.

Conclusion du Chapitre 4

Les performances de la décharge Ar-N₂/O₂ pour la production de photons UV + Visible ont été exposées. Nous avons déterminé, pour une pression de 1 Torr, avec la décharge planaire hybride (HF&DC) et la décharge à onde de surface cylindrique que le rendement énergétique de production de photons UV+ Visible est maximal pour une fraction de gaz réactifs de 15%. Nous avons pu montrer que la présence d'O₂ favorise la création d'espèces NO γ qui émettent dans les longueurs d'onde UV (230 à 350 nm). Cependant, nous avons observé que, malgré la création de ces espèces émettrices dans les UV, le rendement énergétique diminue avec le pourcentage d'O₂. La diminution du rendement énergétique avec le pourcentage d'O₂ est expliquée en grande partie, comme pour la fraction de gaz réactifs, par une diminution importante de la densité électronique. Au final, quelles que soient les conditions, l'émission de la décharge Ar-N₂/O₂ reste peu adaptée à l'élaboration d'une lampe fluorescente. Les raisons sont liées au faible rendement énergétique de la décharge, ainsi qu'à la répartition spectrale de son émission qui est large dans le domaine UV et importante dans l'IR.

Nous avons considéré par la suite, le cas de la décharge $Ar-S_2$ dont l'émission UV, proche du domaine du visible, est bien plus adaptée à la conception d'une lampe fluorescente. Au moyen d'un thermostat, la pression de vapeur de soufre qui maximise le rendement de production UV + Visible de la décharge a pu être déterminée (500 mTorr). Nous avons ensuite observé que la diminution de la pression partielle d'argon augmente le rendement énergétique. Toutefois, les rendements énergétiques obtenus restent relativement bas (4 %) et s'expliquent par une importante dépense énergétique dans la dissociation moléculaire du soufre S₈ en S₂ (espèce émettrice).

En vue de la conception d'un prototype de lampe fluorescente, les performances photométriques de la décharge Ar-S₂ couverte par des films fluorescents chargés par différents mélanges de luminophores, ont été présentées. Plusieurs pistes ont été envisagées et se différencient par le type de luminophores utilisés ainsi que par leurs dispositions autour de la décharge Ar-S₂ (couche ou mélange). Nous avons constaté que l'utilisation de luminophores d'absorption Visible conduit, quelle que soit leur disposition, à une conversion UV-Visible partielle. L'utilisation de luminophores UV, mélangés dans le film, s'est avérée plus adaptée à la conversion de l'émission de la décharge Ar-S₂. Les grandeurs photométriques que nous avons déterminées sont satisfaisantes et comparables aux standards des tubes fluorescents ou LED actuels (IRC > 80, CCT ~ 4000 K). Cependant, en raison du faible rendement énergétique de la décharge Ar-S₂, les performances du prototype final de lampe sont réduites et son efficacité lumineuse bien inférieure à celle des LEDs actuelles.

CONCLUSION GENERALE

Conclusion générale

Conclusion générale

Mon travail de thèse s'est inscrit dans le cadre du projet ANR-ADELINE et a été réalisé en collaboration avec l'ICCF (Clermont-Ferrand) et l'Institut PPrime (Poitiers), partenaire du projet ANR. Ce travail porte sur l'étude exploratoire d'une nouvelle génération de lampe fluorescente sans mercure et de longue durée de vie. Elle repose sur le remplacement du mercure par un gaz réactif N₂/O₂ ou S₂ pour l'émission UV + Visible, l'utilisation de décharge HF produite par un applicateur d'onde appelé cathode (froide) HF pour éviter la dégradation des électrodes et, enfin, par l'utilisation de luminophores adaptés au spectre d'émission des gaz moléculaires utilisés.

L'un des objectifs de ce travail concerne l'optimisation des performances de la décharge à cathode HF et, plus particulièrement, de son efficacité énergétique, *i.e.*, sa capacité à produire un rayonnement pour un minimum de puissance consommée. Cela impose, en premier lieu, l'optimisation des cathodes en termes de transmission et de couplage et, dans ce travail, nous avons considéré deux configurations : planaire et cylindrique. Ces deux types de cathode à structure coaxiale se différencient par le mode de propagation et par l'intensité de l'onde dans le dispositif, ce qui se répercute sur la longueur du plasma HF obtenu : à puissance égale, le plasma de cathode planaire s'étend sur des longueurs nettement inférieures à celles obtenues pour un plasma à onde de surface cylindrique.

Pour répondre à cette première exigence, nous avons conçu des cathodes préadaptées en procédant par étapes successives et en utilisant des approches expérimentales et numériques adaptées à chaque type de cathode, à savoir : la méthode de mesure d'impédance connectée à celle de changement de plan et la modélisation électromagnétique à 2 ports, pour la cathode planaire et, la modélisation à 1 port avec la validation par des mesures électromagnétiques, pour la cathode cylindrique. Ce travail a abouti par la réalisation des cathodes d'efficacité en transmission proche du maximum (> 95%), ce qui a permis de s'affranchir de l'utilisation d'adaptateur d'impédance dans le circuit électrique. La modélisation à 1 port, appliquée aussi à la cathode planaire, a permis d'estimer le taux de fuites par rayonnement HF hors décharge, qui est de l'ordre de 20 % pour les deux types de cathodes réalisées. Ces pertes ne sont pas négligeables, mais lors du travail d'optimisation énergétique de la décharge, nous avons noté qu'elles peuvent être réduites par de très faibles ajustements du positionnement diélectrique de passage des micro-ondes (cathode planaire) ou par l'excitation d'un double plasma (cathode cylindrique).

L'un des avantages des cathodes HF coaxiales consiste en la possibilité d'être polarisées par l'application d'une tension DC pour former ainsi un plasma additionnel : plasma de colonne positive. Dans ce mode de fonctionnement hybride (HF&DC), le plasma de cathode HF prend le rôle de la lueur négative, principal réservoir en électrons pour l'initiation et l'entretien de la colonne positive. La

conséquence directe est la réduction drastique de la différence de potentiel à la cathode et, donc, de la tension de décharge corrélée à un maximum de courant.

En effet, dans les conditions expérimentales (argon à pression autour du Torr, puissance HF jusqu'à 10 W, distance inter-électrodes 10,5 cm) utilisées pour les *décharges à cathode planaire* dans un tube calé sur le standard T5 (14 mm) des lampes fluorescentes, nous avons déterminé une tension de décharge de seulement ~60 V contre quelques centaines de volts requises pour une décharge DC sans cathode HF. Outre le bénéfice que la cathode HF procure au niveau de l'échauffement de la cathode et de sa pulvérisation, les faibles valeurs de tensions de décharge permettent également de s'affranchir du ballast dans le circuit électrique.

L'étude avancée conduite, pour la première fois à notre connaissance, sur ce type de décharges hybrides à cathode planaire a permis de mettre en évidence la relation d'interdépendance entre les deux plasmas (de cathode HF/lueur négative et de colonne positive), l'impact de la tension DC sur la transmission et le couplage HF et le profit procuré par la colonne positive sur le rendement énergétique global de la décharge. A titre d'exemple, nous pouvons rappeler cet effet de la tension DC sur le couplage de l'onde induit par la variation de l'impédance de la décharge. En effet, cette variation d'impédance se traduit par une redistribution des composantes (active et réactive) de la puissance HF transmise et, donc, par un changement du couplage de l'onde au plasma. Le maximum de couplage est corrélé au maximum de courant associé à une tension seuil (~60 V dans nos conditions), ce qui mène à un double de rendement énergétique d'émission par rapport à celui obtenu en l'absence de colonne positive.

Malgré les avantages de la présence d'une colonne positive dans une décharge hybride (HF&DC) à cathode planaire, telle qu'obtenue dans nos conditions, celle-ci est peu favorable à l'utilisation du soufre en raison de la présence constante de la zone froide (espace sombre de Faraday).

Avec la mise en œuvre des *cathodes à onde de surface cylindrique*, ce travail a été poursuivi dans l'argon en utilisant deux configurations, différentes par la manière d'injection de la puissance HF dans la décharge : une configuration dite *interne*, pour laquelle le diélectrique du tube de décharge est dans la continuité du diélectrique de la cathode HF et, de ce fait, l'onde suit le même chemin (interne) ; et une deuxième configuration dite *externe*, où l'injection des micro-ondes est reportée à l'extérieur du tube de décharge. Cette deuxième configuration s'est imposée comme une nécessité évidente en vue de l'utilisation du mélange avec du soufre, qui exige l'absence de toute fuite résiduelle et, donc, une étanchéité totale (tube de décharge scellé).

La première conclusion tirée de l'étude de la décharge à onde de surface cylindrique en configuration *interne* (tube de décharge non-scellé) porte sur la possibilité d'obtenir deux régimes de fonctionnement, à 1 et 2 colonnes de plasma, le deuxième étant énergétiquement plus efficace grâce à une meilleure consommation de puissance HF, mais les rendements restent du même ordre de grandeur. En ce qui concerne le régime à 1 colonne (tube non-scellé) et le régime, nécessairement à 1 colonne, obtenu dans

un tube scellé, nous avons confirmé expérimentalement leur équivalence en termes de rendement énergétique d'émission. Celui-ci est près de 2 fois plus élevé que le rendement obtenu avec la décharge hybride (HF&DC) à cathode planaire. Par contre, dans les conditions géométriques imposées par les contraintes technologiques de scellement verre/métal, qui nous ont amenées à réduire la section transversale du tube de décharge de 14 à 9 mm, le fonctionnement hybride (HF&DC) n'a pas permis d'en tirer de bénéfice énergétique via la colonne positive.

Ces cathodes, améliorées en argon, ont été utilisées avec des mélanges de gaz où l'additif est réactif et moléculaire, pour une émission spectrale large (UV + Visible). Ainsi, pour le mélange Ar- N_2/O_2 , les configurations planaire (mode HF&DC) et cylindrique ont été examinées, alors que pour le mélange Ar- S_2 , l'étude a été rapidement limitée à la configuration cylindrique en tube scellé.

Pour le mélange Ar-N₂/O₂, dont l'émission UV + Visible est produite par la désexcitation des espèces N₂ et NO, nous avons conclu que celui-ci n'est pas approprié pour l'application à l'éclairage, du moins dans les conditions (composition, pression) explorées dans cette étude. En effet, l'émission UV s'étend sur un domaine spectral large, jusqu'aux UV lointains, défavorables à la conversion en lumière Visible. De plus, l'émission IR des raies de l'argon représente une importante perte d'énergie, car elle ne peut être convertie efficacement en émission Visible par des luminophores. De cette étude exploratoire, nous pouvons également retenir la décroissance rapide en rendement énergétique avec l'augmentation en concentration des éléments réactifs, que ce soit la proportion de N₂+O₂ par rapport à Celle de Ar ou, la proportion de O₂ par rapport à N₂. Ce comportement est expliqué, en grande partie, par la diminution importante de la densité électronique avec la concentration de ces éléments.

En ce qui concerne le mélange Ar-S₂, celui-ci présente une répartition spectrale bien plus avantageuse. Premièrement, la bande d'émission UV (plus restreinte par rapport au cas précédent) est proche du domaine du Visible, ce qui favorise la conversion UV-Visible d'un luminophore en limitant les pertes énergétiques par décalage de Stokes. Deuxièmement, l'émission IR est fortement réduite, ce qui présente un autre avantage du point de vue énergétique. Nous avons pu déterminer que la pression partielle de vapeurs de soufre, pour laquelle le rendement de production de photons UV + Visible de la décharge est maximal, se situe autour de 500 mTorr. Nous avons pu également montrer que l'argon désexcite les niveaux vibrationnels de la molécule de S₂, ce qui est énergétiquement défavorable. Cependant, pour permettre l'amorçage de la décharge et assurer une production suffisante d'électrons, une pression partielle minimale d'argon reste requise.

Enfin, pour obtenir une émission exclusivement dans le domaine Visible et arriver à un prototype complet de lampe, des films fluorescents chargés en luminophores ont été développés par l'ICCF

(Clermont-Ferrand) et utilisés avec la décharge Ar-S₂. Une première approche envisagée pour la formulation des luminophores, s'est appuyée sur l'utilisation de luminophores dont l'absorption se trouve dans le domaine visible, pour convertir l'émission de la décharge Ar-S₂ dans le vert et le rouge, et sur l'utilisation d'un seul luminophore UV pour compléter l'émission de la lampe dans le bleu. Nous avons constaté que la conversion UV-Visible est, soit partielle (transmission UV), soit conduit à une émission bleue trop importante, et ce, pour toutes les proportions de luminophores dans le film fluorescent testées. Pour cette raison, le choix a été de s'orienter vers une seconde approche, en s'appuyant sur l'utilisation des mélanges de luminophores dont l'absorption est principalement dans le domaine UV. Nous avons ainsi examiné, pour plusieurs mélanges de ces luminophores, les performances photométriques et colorimétriques des films, qui se sont avérés satisfaisantes, avec des efficacités lumineuses du rayonnement élevées ($r_r = 300 \text{ lmW}^{-1}$). Cependant, les rendements de conversion/transmission obtenus sont assez faibles au regard de ceux des tubes fluorescents (13 % contre 36 %) et cela s'explique, notamment, par des pertes de rayonnement visible (émission luminophore + Ar-S₂) importantes dans l'épaisseur du film et dans le dispositif (réflexion internes).

Sur le plan visuel, les performances du prototype réalisé sont très satisfaisantes, que ce soit au niveau photométrique ($r_r = 300 \text{ lmW}^{-1}$), colorimétrique (IRC ~ 80, CCT ~ 4000 K) et de l'homogénéité. Malheureusement, ce constat ne peut être établi au niveau énergétique, car l'efficacité lumineuse de la lampe reste inférieure à celle des LED actuelles (10 lmW⁻¹ contre 150 lmW⁻¹). Cette efficacité limitée est essentiellement expliquée par le faible rendement énergétique d'émission de la décharge Ar-S₂ qui reste bien inférieur à celui des décharges au mercure des tubes fluorescents (4% contre 66%). A la différence du mercure, le soufre requiert une importante dépense énergétique pour la dissociation moléculaire ($S_8 \rightarrow S_2$). De plus, comme indiqué plus haut, le rendement de conversion UV-Visible des luminophores UV est confronté à l'absorption non négligeable de l'émission Visible de la décharge par le film hôte des luminophores ainsi qu'aux réflexions internes dans le dispositif.

Perspectives

Du point de vue de la décharge, nous avons réussi à concevoir des cathodes HF qui jouent à la fois le rôle d'applicateur d'onde et de transformateur d'impédance, pour aboutir à des performances en transmission de puissance, du générateur à l'interface cathode HF/décharge, proches de 100%. Toutefois, nous avons évoqué, d'une part, les pertes non négligeables dues au rayonnement HF hors décharge et, d'autre part, la part de puissance qui ne contribue pas efficacement au chauffage électronique. Nous avons montré que cela permettrait de doubler le rendement énergétique d'émission de la décharge. Dans ce sens, l'exploitation de la configuration à double plasma pourrait être très intéressante, à condition de trouver des solutions technologiques de scellement. Pour pallier ce

problème, une simulation auto-cohérente en considérant l'ensemble du dispositif (avec, par exemple, Comsol multiphysic HF&Plasma) pourrait être également de grande utilité.

En termes de caractérisation de la décharge d'argon, il serait intéressant de développer un modèle collisionnel-radiatif qui permettrait, par ajustements de spectre synthétique sur un profil de raies expérimental, de déterminer la densité et la température électronique. Leur connaissance faciliterait l'optimisation énergétique de la décharge.

Pour la décharge avec du soufre, un outil similaire à celui que nous avons utilisé pour déterminer la température rotationnelle de la molécule de N₂ pourrait être aussi développé. La construction d'un spectre synthétique de la transition isolée B:X (v'=8 \rightarrow v'=0) du S₂ pourrait s'appuyer, avec les constantes moléculaires associées, sur un outil comme Pgofer [93].

Dans la perspective du développement d'une lampe basse pression, sans mercure, et à la lumière des résultats obtenus, l'efficacité lumineuse atteignable serait, *a priori*, encore assez loin des performances actuelles des tubes fluorescents ou des LED. Cependant, pour le cas de la décharge de soufre, d'autres pistes pourraient être envisagées au niveau du gaz porteurs, telles que l'utilisation du xénon ou du krypton. Une autre piste à explorer est celle de l'utilisation d'autres émetteurs UV comme, par exemple, le CS, dont l'émission est relativement étroite et surtout proche du pic d'émission du mercure à 254 nm. L'utilisation de cette émission avec un mélange de luminophores semblables à celui des tubes fluorescents pourrait amener, si le rendement de décharge est suffisamment élevé, à une meilleure efficacité lumineuse.

Annexe 1 : Définition des grandeurs radiométriques, photométriques, et colorimétriques

La radiométrie est un domaine de l'optique qui quantifie un rayonnement par l'énergie que celui-ci transporte.

En radiométrie, la grandeur de départ est le <u>flux énergétique</u> (noté F_e) exprimée en W qui correspond à la puissance lumineuse rayonnée par une source. Le flux énergétique peut également être décomposé sur le spectre, on parle de <u>flux spectral</u>. Cette densité de flux par unité de longueur d'onde se note F_{λ} et est exprimé en Wnm⁻¹. L'intégration du flux spectral sur le domaine de longueur d'onde considéré conduit au flux énergétique de la source sur ce domaine. Plus généralement, on relie une grandeur radiométrique X_e à sa décomposition spectrale X_{λ} de la façon suivante :

$$X_e = \int_{\Delta\lambda} X_\lambda \, d\lambda. \tag{A1.7}$$

où $\Delta\lambda$ désigne le domaine de longueurs d'onde considéré. Selon le choix des bornes d'intégration, on peut donner ces grandeurs par domaines de longueurs d'onde.

On définit la <u>luminance énergétique</u> d'un faisceau lumineux comme la densité de flux énergétique rayonné par unité d'étendu géométrique définissant ce faisceau.



Figure A1.1 Schéma représentant les paramètres de la définition de la luminance énergétique.

$$L_e = \frac{d^2 F_e}{d^2 G} = \frac{d^2 F_e}{d\Omega_{\Sigma} \, d\Sigma \cos(\alpha_{\Sigma})},\tag{A1.2}$$

où dF_e est le flux énergétique émis par un l'élément de surface $d\Sigma$ de la source en direction d'un éléments de surface dS. d^2G correspond à l'étendu géométrique élémentaire du faisceau entre les surfaces élémentaires $d\Sigma$ et dS. $d\Omega_{\Sigma}$ est l'angle solide sous lequel l'élément de surface dS est vu depuis $d\Sigma$ et α_{Σ} est l'angle entre la normale à la surface de la source et la droite qui joint les éléments de surface $d\Sigma$ et dS.

En supposant que le rayonnement émis par la source considérée est orthotrope (*i.e.* source lumineuse lambertienne) et uniforme en surface, on peut relier sa luminance énergétique L_e à son flux énergétique F_e de la façon suivante :

$$F_e = \pi S L_e, \tag{A1.3}$$

où S est la surface totale d'émission de la source.

De façon analogue au flux, l'intégration de la luminance spectrale (L_{λ}) sur la gamme de longueur d'onde considérée conduit à la luminance énergétique sur ce même domaine (équation A1.1).

La photométrie est un domaine connexe à la radiométrie qui considère les rayonnements lumineux tels que perçus par l'œil humain. La CIE (Commission Internationale de l'Eclairage) a défini en 1924 un observateur standard en vision diurne au moyen de la courbe de sensibilité spectrale relative, appelée $V(\lambda)$ [94].



Figure A1.2 Courbe de la sensibilité spectrale relative de l'observateur standard défini par la CIE.

Analytiquement, on relie une grandeur photométrique X_{ν} à son équivalent radiométrique X_e par l'équation suivante :

Annexes

$$X_{\nu} = K_m \int_0^\infty V(\lambda) X_e(\lambda) \, d\lambda, \tag{A1.4}$$

où K_m est l'efficacité lumineuse spectrale maximale, sa valeur pour la vision diurne est proche de 683 lmW⁻¹.

La courbe $V(\lambda)$ étant nulle en dehors du visible, l'intégration spectrale est finalement restreinte au domaine du visible (380 – 780 nm). Le flux visuel (noté F_{ν}) s'exprime en lm, et la luminance visuelle (notée L_{ν}) en cd.m⁻².

Les grandeurs colorimétriques suivantes sont définies pour caractériser la couleur de l'émission des lampes :

<u>Les coordonnées chromatiques dans le diagramme de chromaticité (CIE 1931)</u> qui sont une représentation cartésienne des stimulus de couleur où les points de coordonnées chromatiques (x,y) représentent la chromaticité. Dans ce diagramme, la courbe du corps noir donne la variation de la chromaticité d'un corps noir en fonction de sa température (voir figure A1.3).

La température de couleur proximale (CCT pour *Correlated Color Temperature*) exprimées en K qui correspond à la température d'un corps noir dont la chromaticité se rapproche le plus de celle de la source de lumière considérée. Pour l'éclairage domestique, une ambiance lumineuse chaude est préconisée, et le plus fréquent est un choix de température de couleur de 2700 K. En éclairage tertiaire, un blanc plus neutre à 4000 K est choisi afin de limiter le contraste chromatique avec la lumière naturelle. Les points de coordonnées (x,y) correspondants à différentes températures de corp noir sont donnés figure A1.3.



Figure A1.3 Diagramme de chromaticité (CIE 1931), représentation de la courbe du corps noir et des courbes iso-température de couleur.

<u>L'Indice de Rendu des Couleurs</u> noté IRC d'une source de lumière qui s'obtient par calcul à partir du spectre d'émission de cette source. Le calcul tient compte de l'écart colorimétrique entre la couleur perçue d'un échantillon s'il était éclairé par cette source, et la couleur perçue du même échantillon éclairé par une source de référence de même température de couleur (corps noir pour des CCT<5000 K et lumière du jour standardisée pour CCT > 5000 K). 14 échantillons sont considérés. Pour chaque échantillon, un indice variant de 0 à 100 caractérise la capacité de la source à restituer correctement cette couleur en tenant compte des effets d'adaptation chromatique. La valeur moyenne donne l'IRC de la source, noté Ra. Par construction, les sources de référence, de spectre continu, ont un IRC de 100.



Figure A1.4 Mesures de l'IRC a) de la lumière du jour b) d'un tube fluorescent.

Comme le montre la figure A1.4, l'IRC de la lumière du jour est de 100 car elle est la référence photométrique. Dans le cas d'un tube fluorescent, on peut constater des écarts importants sur certaines couleurs, toutefois la moyenne Ra reste de 83 ce qui, visuellement, est satisfaisant. Les lampes du commerce (tubes fluorescents, LED blanches) affichent un IRC de 80, c'est-à-dire compris entre 80 et 90. Des gammes supérieures présentent un IRC de 90, c'est-à-dire compris entre 90 et 100, réservées pour des tâches avec une exigence en termes de discrimination des couleurs.

Annexe 2 : Formalismes S_{ij} et Z_{ij}

Formalisme S_{ij}. Un élément de circuit HF est caractérisé par les coefficients S_{ij} de la combinaison linéaire donnée par l'équation A2.1 qui associe un signal réfléchi b_i en un point d'accès *i* du circuit aux signaux incidents a_j appliqués en tout point d'accès *j* :

$$b_i = \sum_{j=1}^N S_{ij} a_j \tag{A2.1}$$

où N représente le nombre d'accès (ou de ports) du circuit.

Un composant HF comme un applicateur, peut être représenté par un quadrupôle (figure A2.1), c'est-àdire un système à 2 ports (N = 2).



Figure A2.1 Schéma d'un quadrupôle.

L'équation A2.1 appliquée au quadrupôle conduit alors au système d'équations A2.2 :

$$b_1 = S_{11}a_1 + S_{12}a_2$$

$$b_2 = S_{21}a_1 + S_{22}a_2$$
(A2.2)

où $S_{11} = b_1/a_1|_{a2=0}$ et $S_{22} = b_2/a_2|_{a1=0}$ représentent les coefficients de réflexion en entrée du quadrupôle lorsque $a_2 = 0$, et en sortie du quadrupôle quand $a_1 = 0$. Les deux autres coefficients, $S_{21} = b_2/a_1|_{a2=0}$ et $S_{12} = b_1/a_2|_{a1=0}$, sont respectivement le gain et le gain inverse du quadripôle.


Figure A2.2 Schéma d'un quadripôle chargé

Lorsque le quadrupôle est terminé par une charge d'impédance Z_c (Figure A2.2), les coefficients de réflexion S_{11} et S_{22} au niveau du port d'entrée et de la charge sont définis par :

$$\Gamma_e = \frac{b_1}{a_1}\Big|_{a_2 \neq 0} = S_{11} + S_{12} \frac{a_2}{a_1} \quad \text{et} \quad \frac{1}{\Gamma_c} = \frac{b_2}{a_2}\Big|_{a_2 \neq 0} = S_{22} + S_{21} \frac{a_1}{a_2}$$
(A2.3)

En éliminant le rapport a_2/a_1 des expressions A2.3, on obtient une relation entre ces deux coefficients de réflexion (Γ_e , Γ_c) du quadripôle chargé et ceux intrinsèques à ce-même quadripôle (S_{ij}) :

$$\Gamma_e = S_{11} + \frac{S_{12}S_{21}\Gamma_c}{1 - S_{22}\Gamma_c} \quad \text{ou} \ \frac{1}{\Gamma_c} = S_{22} - \frac{S_{12}S_{21}}{S_{11} - \Gamma_e}$$
(A2.4)

Pour un coefficient de réflexion Γ_e connu au port d'entrée, l'équation A2.4 permet donc de déterminer le coefficient de réflexion Γ_c au niveau de la charge.

Formalisme Z_{ij} Les paramètres intrinsèques Z_{ij} permettent de relier la tension à un accès *i* en fonction des courants aux accès *i* et *j* :

$$V_1 = Z_{11}I_1 + Z_{12}I_2$$

$$V_2 = Z_{21}I_1 + Z_{22}I_2$$
(A2.5)

De la même manière que pour S_{ij} , les paramètres intrinsèques Z_{ij} du quadripôle non-chargé sont définis par les rapports tension/courant lorsque les courants I_1 et I_2 sont alternativement nuls :

$$Z_{ii} = \frac{V_i}{I_i}\Big|_{I_j=0}$$
 et $Z_{ij} = \frac{V_i}{I_j}\Big|_{I_i=0}$ (A2.6)

Annexes

Pour le quadripôle chargé, les coefficients de réflexion Γ_e et Γ_c sont respectivement remplacés par l'impédance Z_e vue de l'entrée du quadripôle et l'impédance Z_c de la charge, cette dernière étant définie comme $Z_c = -V_2/I_2$:

$$\begin{aligned} Z_e &= \frac{V_1}{I_1} \Big|_{I_2 \neq 0} = Z_{11} + Z_{12} \frac{I_2}{I_1} \end{aligned} \tag{A2.7} \\ Z_c &= -\frac{V_2}{I_2} \Big|_{I_1 \neq 0} = Z_{22} + Z_{21} \frac{I_1}{I_2} \end{aligned}$$

Par l'élimination du rapport des courants entre les deux expressions, on déduit la relation réciproque entre les deux impédances Z_e et Z_c :

$$Z_e = Z_{11} - \frac{Z_{21}Z_{12}}{Z_{22} + Z_c}$$
 ou $Z_c = \frac{Z_{21}Z_{12}}{Z_{11} - Z_e} - Z_{22}$ (A2.8)

Annexe 3 : Simulations de décharge (COMSOL)

Les modèles de décharge en argon présentés dans cette annexe sont des modèles construits à l'aide du module plasma de COMSOL. Les réactions qui ont lieu dans le volume de la décharge sont définies par l'utilisateur au moyen de leur section efficace de collision (en fonction de l'énergie). On dénombre 7 réactions présentées dans le tableau suivant. L'espèce Ar_s regroupe l'ensemble des états excités métastables, l'ensemble des collisions générant les états radiatifs ne sont pas considérées dans ce modèle.

Réaction	Type de collision	Energie mise en jeux
$e^{-} + Ar \rightarrow e^{-} + Ar$	Elastique	0 eV
$e^{-} + Ar \rightarrow e^{-} + Ar_s$	Excitation	11,5 eV
$e^{-} + Ar_s \rightarrow e^{-} + Ar$	Désexcitation	-11,5 eV
$e^{-} + Ar \rightarrow 2 e^{-} + Ar^{+}$	Ionisation	15,8 eV
$e^{-} + Ar_s \rightarrow 2 e^{-} + Ar^{+}$	Ionisation	4,4 eV
$Ar_s + Ar \rightarrow Ar + Ar$	Désexcitation	
$Ar_s + Ar_s \rightarrow e^- + Ar + Ar^+$	Ionisation	

Tableau A3.1 Liste des différentes réactions en volumes du modèle de décharge DC.

3 réactions sont définies en surface, ce qui regroupent les recombinaisons de charges aux parois du tube ainsi que l'émission d'électrons secondaires au niveau de la cathode :

Réaction	Type de collision	Surface
$Ar^+ + e^- \rightarrow Ar$	Recombinaison	Tube (diélectrique)
$Ar^+ \rightarrow Ar + e^-$	Recombinaison + émission d'électron secondaire	Cathode
Ars \rightarrow Ar	Désexcitation	Cathode + Anode + Tube (diélectrique)

Tableau A3.2 Liste des différentes réactions en surface du modèle de décharge DC.

Pour les frontières du modèle, on distingue deux types de conditions aux limites, les conditions électriques et les conditions particulaires. La condition électrique est définie par un diélectrique au niveau du tube, par un potentiel nul au niveau de la cathode et par un potentiel positif V_g au niveau de l'anode et. Le potentiel V_g est appliqué au travers d'une résistance de Ballast qui permet au modèle de

fixer lui-même la tension de décharge (V_d). Pour les particules, on définit sur chaque parois (diélectrique ou métal) le contact du plasma par la nature de l'interaction des différentes espèces qui le compose avec cette paroi comme par exemple, dans le cas du tube, la recombinaison de charges e⁻ et Ar⁺ (tableau A3.2).

L'étude de la simulation est une étude de type temporel. A l'instant t = 0, une densité électronique uniforme et supérieure à la densité électronique attendue est fixée sur tout le domaine de simulation. L'étude temporelle se termine une fois qu'un état d'équilibre est atteint et que les paramètres du plasma ne varient plus.

On fixe la distance inter-électrodes D_{ak} à 10,5 cm, le diamètre de la décharge à 14 mm, celui de la cathode au même diamètre, et celui de l'anode à 12 mm. Le potentiel plasma ainsi que la densité électronique axiale sont présentés dans les figures A3.1 et A3.2 pour une pression de 1 Torr.



Figure A3.1 Profil axial du potentiel plasma simulé pour une décharge DC ($V_d = 160$ V).



Figure A3.2 Profil axial de la densité électronique simulée pour une décharge DC ($V_d = 60$ V).

Pour simuler la configuration hybride (HF&DC), un couplage multiphysique a été utilisé et combine la physique du module HF et du module plasma. Le couplage réalisé est dit fort car il opère du module HF au module plasma et inversement. Le chauffage ohmique des électrons est donc assuré par la puissance HF déposée au port d'entrée (point d'injection de la puissance HF). La permittivité et la conductivité du milieu de propagation sont déterminées par les différents paramètres du plasma (densité, collisions etc...)

Les réactions du modèle hybride sont identiques à celles qui sont définies dans le modèle DC. Du point de vue HF, les conditions limites sont définies au niveau du tube comme des parois diffusantes à l'infini et métalliques sur les électrodes. Le potentiel plasma ainsi que la densité électronique simulés pour une décharge hybride sont présentés le long de l'axe dans les figures A3.3 et A3.4



Figure A3.3 Profil axial du potentiel plasma simulé pour une décharge planaire hybride ($P_T = P_i - P_r = 10 \text{ W}, V_d = 60 \text{ V}$).



Figure A3.4 Profil axial de la densité électronique simulé pour une décharge planaire hybride $(P_T = P_i - P_r = 10 \text{ W}, V_d = 60 \text{ V}).$

Le potentiel plasma simulé le long de l'axe de la décharge présente des similitudes avec le profil mesuré expérimentalement. Pour ce qui est de la densité électronique, celle-ci est très élevée au niveau de la cathode, et bien supérieure à celle de la colonne positive. On peut remarquer que par rapport au cas DC, la densité électronique de la colonne positive est quasiment 100 fois supérieure. Les densités électroniques déterminées expérimentalement au niveau de la colonne positive sont plus de 10 fois inférieures à celles données par le modèle.

Annexe 4 Onde de surface (cylindrique). Rappels théoriques

Dans les décharges à onde de surface, le maintien du plasma est permis par la propagation d'une onde dite de surface au voisinage d'un diélectrique. Dans le cas d'une configuration cylindrique c'est-à-dire avec un diélectrique tubulaire (section 1.3.2), la composante longitudinale du champ électrique le long de l'axe z est de la forme :

$$E_z = E(r, z)e^{-jk_z z}e^{j\omega t}$$
(A4.1)

Calculons la courbe de phase dans le cas de notre système à trois milieux orienté suivant l'axe z. Il est composé d'un plasma cylindrique de rayon a et de permittivité ε_p , entouré par tube diélectrique de rayon intérieur a et extérieur b de permittivité ε_d et par un milieu vide infini (air) au-delà (pour r > b). Les équations de Maxwell pour un champ électromagnétique avec une variation dans le temps du type $e^{i\omega t}$ s'écrivent :

$$\nabla \times E = -j\omega\mu_0 H \tag{A4.2}$$

$$\nabla \times H = j\omega\varepsilon_0 \varepsilon E \tag{A4.3}$$

$$\nabla . H = 0 \tag{A4.4}$$

$$\nabla . \left(\varepsilon E\right) = 0 \tag{A4.5}$$

A partir des équations de Maxwell (équation A4.2 à A4.5) exprimées en coordonnées cylindriques, l'équation de propagation pour la composante axiale du champ électrique (E_z) s'écrit :

$$\frac{\partial^2}{\partial r^2} E_z + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial x} E_z + \frac{\partial^2}{\partial z^2} E_z + \left[k_{p,d,a}^2\right] E_z = 0, \tag{A4.6}$$

où $k_{p,d,a}$ est le nombre d'onde dans les 3 milieux considérés de permittivité $\varepsilon_{p,d,a}$:

$$k_{p,d,a} = \sqrt{\left(\frac{\omega}{c}\right)^2 \varepsilon_{p,d,a} - k_z^2} = \sqrt{\left(\frac{\omega}{c}\right)^2 \varepsilon_{p,d,a} - (\beta - j\alpha)^2} = \sqrt{\left(\frac{\omega}{c}\right)^2 \varepsilon_{p,d,a} + \gamma^2}.$$
 (A4.7)

avec c la vitesse de la lumière dans le vide, et $\gamma = jk_z = \alpha + j\beta$, où α et β sont respectivement les coefficients de propagation et d'atténuation de l'onde.

L'ensemble des solutions de l'équation A4.6 est une combinaison linaire des fonctions de I_0 et K_0 , respectivement les fonctions de Bessel modifiées de première et de deuxième espèce d'ordre zéro :

$$E_{z} = AI_{0}(k_{p,d,a} r) + BK_{0}(k_{p,d,a} r)$$
(A4.8)

où A et B sont des constantes.

Les respects des conditions limites $(r \rightarrow \infty)$ et $(r \rightarrow 0)$ nous imposent d'écrire :

$$E_z = AI_0(k_p r) \text{ pour } r < a \text{ (plasma)}$$
(A4.9)

$$E_z = CI_0(k_d r) + DK_0(k_d r) \text{ pour } a < r < b \text{ (diélectrique)}$$
(A4.10)

$$E_z = BK_0(k_a r) \text{ pour } r > b \text{ (air)}$$
(A4.11)

L'expression de la composante H_{φ} du champ magnétique peut être déduite à partir de l'équation de Maxwell Faraday (A4.2) sur chacune des zones considérées (plasma, diélectrique, air). La continuité des composantes E_z et H_{φ} nous permet alors d'écrire les relations suivantes pour l'interface plasmadiélectrique (r = a) :

$$AI_0(k_p a) = CI_0(k_d a) + DK_0(k_d a)$$
(A4.12)

$$\frac{\varepsilon_p}{k_p} A I_1(k_p a) = \frac{\varepsilon_d}{k_d} \left(C I_1(k_d a) + D K_1(k_d a) \right)$$
(A4.13)

et pour l'interface diélectrique-air (r = b) :

$$BK_0(k_a b) = CI_0(k_d b) + DK_0(k_d b)$$
(A4.14)

$$-\frac{\varepsilon_a}{k_a}AK_1(k_a b) = \frac{\varepsilon_d}{k_d} \left(CI_1(k_d b) + DK_1(k_d b) \right)$$
(A4.15)

Ce système d'équations admet une solution non-triviale si le déterminant de la matrice de dispersion est nul :

Annexes

$$F = \begin{vmatrix} I_0(k_p a) & 0 & -I_0(k_d a) & -K_0(k_d a) \\ \varepsilon_p k_d I_1(k_d a) & 0 & -\varepsilon_d k_p I_1(k_d a) & -\varepsilon_d k_p K_1(k_d a) \\ 0 & K_0(k_d b) & -I_0(k_d b) & -K_0(k_d b) \\ 0 & -k_d K_1(k_a b) & -\varepsilon_d k_a I_1(k_d b) & \varepsilon_d k_a K_1(k_d b) \end{vmatrix} = 0$$
(A4.16)

La résolution de l'équation de dispersion *F* montre que la propagation d'une onde de surface est possible uniquement lorsque la condition suivante est satisfaite :

$$\omega_p > \omega \sqrt{(1+\varepsilon)}.\tag{A4.17}$$

Annexe 5 Courbes d'émission et d'absorption des Luminophores

Les figures A51 à A5.7 présentent les courbes d'émission et d'absorption des différents luminophores employés pour la conversion de l'émission UV de la décharge $Ar-S_2$ vers le domaine du Visible. Les courbes d'émission sont données pour une excitation à 300 nm dans le cas de luminophores dont l'absorption est essentiellement dans le domaine UV. Dans le cas où l'absorption du luminophores est essentiellement dans le domaine du visible, la courbe d'émission est donnée pour une excitation à 365 nm.



Figure A5.1 Spectre d'émission, pour une excitation à 300 nm (bleu), et d'absorption (noir) du luminophore : BaMgAl₁₀O₁₇ (Eu²⁺).



Figure A5.2 Spectre d'émission, pour une excitation à 365 nm (vert), et d'absorption (noir) du luminophore : $Lu_3Al_5O_{12}$ (Ce³⁺).



Figure A5.3 Spectre d'émission, pour une excitation à 300 nm (vert), et d'absorption (noir) du luminophore : ZnS (Al³⁺, Cu⁺).



Figure A5.4 Spectre d'émission, pour une excitation à 300 nm (vert), et d'absorption (noir) du luminophore : SiAlON (Eu²⁺).



Figure A5.5 Spectre d'émission, pour une excitation à 365 nm (jaune), et d'absorption (noir) du luminophore : $La_3Si_6N_{11}$ (Ce³⁺).



Figure A5.6 Spectre d'émission, pour une excitation à 300 nm (rouge), et d'absorption (noir) du luminophore : Y_2O_2S (Eu³⁺).



Figure A5.7 Spectre d'émission, pour une excitation à 365 nm (rouge), et d'absorption (noir) du luminophore : $SrAlSiN_3$ (Eu²⁺).

Annexe 6 Luminophores UV

Les figures A6.1, A6.2 et A6.3 présentent l'émission (flux spectral et coordonnées chromatiques) d'une décharge Ar-S₂ entourée par trois différents films fluorescents de même épaisseur (200 μ m). Chaque film est chargé par un seul luminophore qui correspond respectivement à l'émission bleue (BaMgAl₁₀O₁₇ dopé Eu²⁺), verte (ZnS dopé Cu) et rouge (Y₂O₂S dopé Eu³⁺) du mélange optimisé.



Figure A6.1 a) Flux spectral de la décharge Ar-S₂ entourée par un film fluorescent d'épaisseur 200 μ m, chargé à 60% de luminophore bleue (BaMgAl₁₀O₁₇ dopé Eu²⁺) ; b) Coordonnées chromatiques correspondantes.



Figure A6.2 a) Flux spectral de la décharge Ar-S₂ entourée par un film fluorescent d'épaisseur 200 μm, chargé à 50% de luminophore vert (ZnS dopé Cu) ; b) Coordonnées chromatiques correspondantes.



Figure A6.3. a) Flux spectral de la décharge Ar-S₂ entourée par un film fluorescent d'épaisseur 200 μ m, chargé à 50% de luminophore rouge (Y₂O₂S dopé Eu³⁺) ; b) Coordonnées chromatiques correspondantes.

Références

- Les enjeux stratégiques des terres rares et des matières premières stratégiques et critiques; Rapport n° 617 (2015-2016), tome I, déposé le 19 mai 2016
- [2] Données AIE, https://www.iea.org/search?q=lighting
- [3] World Health Organization **2017** Mercury and Health, <u>www.who.int/news-room/fact-sheets/detail/mercury-and-health</u>
- [4] <u>https://www.syndicat-eclairage.com/</u>
- [5] <u>https://fr.tradingeconomics.com/commodity/gallium</u>
- [6] <u>https://www.geo.fr/geopolitique/chine-restreint-exportations-vers-europe-metaux-vitaux-transition-energetique-gallium-germanium-electronique-215503</u>
- [7] Mbodji, Mor. « Etude des impacts environnementaux et sanitaires des déchets d'équipements électriques et électroniques (DEEE) au Sénégal: cas de la ville de Dakar », s. d.
- [8] Nachtrieb, Robert, Farheen Khan, et John F. Waymouth. « Cathode Fall Measurements in Fluorescent Lamps ». Journal of Physics D: Applied Physics 38, no 17 (août 2005): 3226. https://doi.org/10.1088/0022-3727/38/17/S26.
- [9] *Les sources de lumière*, Lux Société d'édition (1991) (2nde edition), 231pp (Association française de l'éclairage).
- [10] Maya, J., et R. Lagushenko. « Progress In Low Pressure Mercury–Rare-Gas Discharge Research ». In Advances In Atomic, Molecular, and Optical Physics, édité par Sir David Bates et Benjamin Bederson, 26:321-73. Academic Press, 1989. <u>https://doi.org/10.1016/S1049-250X(08)60065-8</u>.
- [11] Ricard, André. Reactive Plasmas. Paris: Société française du vide, 1996. (chapitre 2)
- [12] Zissis, G., P. Bénétruy, et I. Bernat. « Modeling the Hg-Ar low-pressure-discharge positive column: A comparative study ». *Physical Review A* 45, no 2 (1 janvier 1992): 1135-48. https://doi.org/10.1103/PhysRevA.45.1135.
- [13] Moisan, Michel. *Plasmas collisionnels: Physique des décharges RF et micro-onde*. EDP sciences, 2023. (chapitre 3)
- [14] Lister, G. G., J. E. Lawler, W. P. Lapatovich, et V. A. Godyak. «The physics of discharge lamps ». *Reviews of Modern Physics* 76, no 2 (1 juin 2004): 541-98. <u>https://doi.org/10.1103/RevModPhys.76.541</u>.
- [15] Wharmby, D. O. « Electrodeless Lamps for Lighting: A Review ». *IEE Proceedings A (Science, Measurement and Technology)* 140, no 6 (1 novembre 1993): 465-73. <u>https://doi.org/10.1049/ip-a-3.1993.0071</u>.
- [16] Popov, Oleg, et Jakob Maya. « Characteristics of Electrodeless Ferrite-Free Fluorescent Lamp Operated at Frequencies of 1-15 MHz ». *Plasma Sources Science and Technology* 9, no 2 (1 mai 2000): 227-37. <u>https://doi.org/10.1088/0963-0252/9/2/317</u>.
- [17] Mizojiri, Takafumi, Mitsuru Ikeuchi, Yukihiro Morimoto, et Masashi Kando. « Compact Sulfur Lamps Operated by Antenna-Excited Microwave Discharge ». Japanese Journal of Applied Physics 47, no 10R (17 octobre 2008): 8012. <u>https://doi.org/10.1143/JJAP.47.8012</u>.
- [18] Barros, Anthony. « Luminophores inorganiques sans terre rare pour l'éclairage LEDs : synthèse, caractérisations et évaluation des performances ». These de doctorat, Clermont-Ferrand 2, 2016. <u>https://www.theses.fr/2016CLF22708</u>.
- [19] Kim, M. C., S. H. Yang, J. -H. Boo, et J. G. Han. « Surface treatment of metals using an atmospheric pressure plasma jet and their surface characteristics ». *Surface and Coatings*

Technology, Proceedings of the Eight International Conference on Plasma Surface Engineering, 174-175 (1 septembre 2003): 839-44. <u>https://doi.org/10.1016/S0257-8972(03)00560-7</u>.

- [20] Rafalskyi, D., et A. Aanesland. « Brief Review on Plasma Propulsion with Neutralizer-Free Systems ». *Plasma Sources Science and Technology* 25, no 4 (mai 2016): 043001. <u>https://doi.org/10.1088/0963-0252/25/4/043001</u>.
- [21] « Library ». *MRS Bulletin* 30, no 11 (novembre 2005): 899-901. https://doi.org/10.1557/mrs2005.242.
- [22] Fu, Yangyang, Peng Zhang, John P. Verboncoeur, et Xinxin Wang. « Electrical Breakdown from Macro to Micro/Nano Scales: A Tutorial and a Review of the State of the Art ». *Plasma Research Express* 2, no 1 (février 2020): 013001. <u>https://doi.org/10.1088/2516-1067/ab6c84</u>.
- [23] Masumi Sato, Interpretation for Argon Breakdown in DC and Microwave Fields, Bull. Yamagata Univ. (Eng.) Vol 25 No 2 (1999) pp 119-125]
- [24] Remillard, Stephen, Alejandro Hardaway, B Mork, Jake Gilliland, et Joseph Gibbs. « Using a reentrant microwave resonator to measure and model the dielectric breakdown electric field of gases ». Progress In Electromagnetics Research B 15 (1 janvier 2009): 175-95. <u>https://doi.org/10.2528/PIERB09041706</u>.
- [25] Radmilović-Radjenović, Marija, et Branislav Radjenović. « Modelling of a Low-Pressure Argon Breakdown in Combined Fields ». *Plasma Sources Science and Technology* 15, no 1 (novembre 2005): 1. <u>https://doi.org/10.1088/0963-0252/15/1/001</u>.
- [26] Lieberman, Michael A., et Alan J. Lichtenberg. *Principles of Plasma Discharges and Materials Processing*. John Wiley & Sons, 2005. (chapitre 8)
- [27] Gudmundsson, Jon Tomas, et Ante Hecimovic. « Foundations of DC Plasma Sources ». Plasma Sources Science and Technology 26, no 12 (novembre 2017): 123001. https://doi.org/10.1088/1361-6595/aa940d.
- [28] E. Badareu et I. Popescu Gaz Ionisés Décharge Electrique Dans Les Gaz, Dunod, Paris, France, 1968
- [29] Lisovskiy, Valeriy, V Koval, E Artushenko, et V Yegorenkov. « Validating the Goldstein– Wehner law for the stratified positive column of dc discharge in an undergraduate laboratory ». *European Journal of Physics* 33 (1 novembre 2012): 1537-45. <u>https://doi.org/10.1088/0143-0807/33/6/1537</u>.
- [30] Moisan, Michel, Ivan P. Ganachev, et Helena Nowakowska. « Concept of power absorbed and lost per electron in surface-wave plasma columns and its contribution to the advanced understanding and modeling of microwave discharges ». *Physical Review E* 106, no 4 (7 octobre 2022): 045202. <u>https://doi.org/10.1103/PhysRevE.106.045202</u>.
- [31] Moisan, Michel, et Helena Nowakowska. « Contribution of Surface-Wave (SW) Sustained Plasma Columns to the Modeling of RF and Microwave Discharges with New Insight into Some of Their Features. A Survey of Other Types of SW Discharges ». *Plasma Sources Science and Technology* 27, no 7 (juillet 2018): 073001. <u>https://doi.org/10.1088/1361-6595/aac528</u>.
- [32] Moisan, M., et Z. Zakrzewski. « Plasma Sources Based on the Propagation of Electromagnetic Surface Waves ». Journal of Physics D: Applied Physics 24, no 7 (juillet 1991): 1025. <u>https://doi.org/10.1088/0022-3727/24/7/001</u>.
- [33] Lebedev, Yu A. « Microwave Discharges: Generation and Diagnostics ». Journal of Physics: Conference Series 257, no 1 (novembre 2010): 012016. <u>https://doi.org/10.1088/1742-6596/257/1/012016</u>.
- [34] Brevet : J. Pelletier, A. Lacoste, Applicateur à onde de surface, déposé le 11 juillet 2013, FR 12 56 673 – WO2014009412A

- [35] Beneking, C., et P. Anderer. « Radiation Efficiency of Hg-Ar Surface Wave Discharges ». *Journal of Physics D: Applied Physics* 25, no 10 (octobre 1992): 1470. https://doi.org/10.1088/0022-3727/25/10/012.
- [36] Baële, Pierre, Stéphane Béchu, Alexandre Bès, Jacques Pelletier, et Ana Lacoste. « An Open-Ended Coaxial Plasma Source with Extended Operating Parameters: Plasma Impedance, Coupling and Energy Efficiency ». *Plasma Sources Science and Technology* 23, no 6 (décembre 2014): 064006. <u>https://doi.org/10.1088/0963-0252/23/6/064006</u>.
- [37] Baële, Pierre. « Étude des sources plasma micro-onde à structure coaxiale pour la conception amont d'applicateurs à transformateur d'impédance intégré. Influence de la pression, de la géométrie et de la fréquence d'excitation ». Phdthesis, Université Grenoble Alpes, 2015. <u>https://theses.hal.science/tel-01269788</u>.
- [38] Margot-Chaker, Joëlle, Michel Moisan, Zenon Zakrzewski, Vital M. Glaude, et Gaston Sauvé. « Phase Sensitive Methods to Determine the Wavelength of Electromagnetic Waves in Lossy Nonuniform Media: The Case of Surface Waves along Plasma Columns ». *Radio Science* 23, no 6 (1988): 1120-32. <u>https://doi.org/10.1029/RS023i006p01120</u>.
- [39] Lieberman, Michael A., et Allan J. Lichtenberg. Principles of Plasma Discharges and Materials Processing. 1re éd. Wiley, 2005. <u>https://doi.org/10.1002/0471724254</u> (Chapitre 3).
- [40] Overzet, Lawrence J., et Michael B. Hopkins. « Comparison of Electron-Density Measurements Made Using a Langmuir Probe and Microwave Interferometer in the Gaseous Electronics Conference Reference Reactor ». *Journal of Applied Physics* 74, no 7 (1 octobre 1993): 4323-30. <u>https://doi.org/10.1063/1.354397</u>.
- [41] Lindberg, L., et A. Eriksson. « Optimum Design of a Microwave Interferometer for Plasma Density Measurements ». *Journal of Physics E: Scientific Instruments* 15, no 5 (mai 1982): 548. <u>https://doi.org/10.1088/0022-3735/15/5/017</u>.
- [42] Konjević, N., M. Ivković, et N. Sakan. « Hydrogen Balmer lines for low electron number density plasma diagnostics ». Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy, Honoring Issue: A Collection of Papers on Plasma and Laser Spectrochemistry. Dedicated to Gary M. Hieftje on the occasion of his 70th birthday., 76 (1 octobre 2012): 16-26. https://doi.org/10.1016/j.sab.2012.06.026.
- [43] O Akatsuka, Hiroshi. « Optical Emission Spectroscopic (OES) analysis for diagnostics of electron density and temperature in non-equilibrium argon plasma based on collisional-radiative model ». Advances in Physics: X 4 (31 mars 2019): 257-81. https://doi.org/10.1080/23746149.2019.1592707.
- [44] Park, Hoyong, S. J. You, et Wonho Choe. « Correlation between Excitation Temperature and Electron Temperature with Two Groups of Electron Energy Distributions ». *Physics of Plasmas* 17, no 10 (1 octobre 2010): 103501. https://doi.org/10.1063/1.3486093.
- [45] Nist database <u>https://www.nist.gov/pml/atomic-spectra-database</u>
- [46] Denysenko, Igor, AV Gapon, NA Azarenkov, Kostya Ostrikov, et Ming Yu. « Parameters and equilibrium profiles for large-area surface-wave sustained plasmas ». *Physical review. E, Statistical, nonlinear, and soft matter physics* 65 (1 mai 2002): 046419. https://doi.org/10.1103/PhysRevE.65.046419.
- [47] Park, Hoyong, et Wonho Choe. « Parametric study on excitation temperature and electron temperature in low pressure plasmas ». *Current Applied Physics* 10, no 6 (1 novembre 2010): 1456-60. <u>https://doi.org/10.1016/j.cap.2010.05.013</u>.
- [48] Bruggeman, P. J., N. Sadeghi, D. C. Schram, et V. Linss. « Gas Temperature Determination from Rotational Lines in Non-Equilibrium Plasmas: A Review ». *Plasma Sources Science and Technology* 23, no 2 (avril 2014): 023001. <u>https://doi.org/10.1088/0963-0252/23/2/023001</u>.

- [49] Poirier, J.-S., P.-M. Bérubé, J. Muñoz, J. Margot, L. Stafford, et M. Chaker. « On the Validity of Neutral Gas Temperature by N2 Rovibrational Spectroscopy in Low-Pressure Inductively Coupled Plasmas ». *Plasma Sources Science and Technology* 20, no 3 (avril 2011): 035016. https://doi.org/10.1088/0963-0252/20/3/035016.
- [50] C Noel, R Cardoso, J-M Thiébaut, Synthetic Spectrum for Rotationnal Temperature Determination, Code développé en interne par l'Isnstitut Jean Lamour, CNRS Nancy (2005).
- [51] Latrasse, L., N. Sadeghi, A. Lacoste, A. Bès, et J. Pelletier. « Characterization of High Density Matrix Microwave Argon Plasmas by Laser Absorption and Electric Probe Diagnostics ». *Journal* of Physics D: Applied Physics 40, no 17 (août 2007): 5177. <u>https://doi.org/10.1088/0022-3727/40/17/024</u>.
- [52] Gibson, N. D., et J. E. Lawler. « A radiometric and electrical characterization of low pressure dc positive column sulfur discharges ». *Journal of Applied Physics* 79, no 1 (1 janvier 1996): 86-92. <u>https://doi.org/10.1063/1.360794</u>.
- [53] Merchant, V. E., et M. L. Andrews. « Technique for Measuring Rotational Temperature of Microwave Excited Diatomic Sulfur ». *Applied Optics* 19, no 18 (15 septembre 1980): 3113-17. <u>https://doi.org/10.1364/AO.19.003113</u>.
- [54] Biloiu, Costel, Xuan Sun, Zane Harvey, et Earl Scime. « Determination of rotational and vibrational temperatures of a nitrogen helicon plasma ». *Review of Scientific Instruments* 77 (1 novembre 2006): 10F117-10F117. <u>https://doi.org/10.1063/1.2219392</u>.
- [55] Gilmore, Forrest R., Russ R. Laher, et Patrick J. Espy. « Franck–Condon Factors, r-Centroids, Electronic Transition Moments, and Einstein Coefficients for Many Nitrogen and Oxygen Band Systems ». *Journal of Physical and Chemical Reference Data* 21, no 5 (1 septembre 1992): 1005-1107. <u>https://doi.org/10.1063/1.555910</u>.
- [56] Leloup, Frédéric B., Sven Leyre, Eva Bauwens, Toon Van den Abeele, et Peter Hanselaer. « Design of an Inexpensive Integrating Sphere Student Laboratory Setup for the Optical Characterization of Light Sources ». *European Journal of Physics* 37, no 1 (novembre 2015): 015302. <u>https://doi.org/10.1088/0143-0807/37/1/015302</u>.
- [57] Lieberman, Michael, et Alan Lichtenberg. « Principles of Plasma Discharges and Materials Processing: Second Edition ». Principles of Plasma Discharges and Materials Processing, 2nd Edition, by Michael A. Lieberman, Alan J. Lichtenberg, pp. 800. ISBN 0-471-72001-1. Wiley-VCH, September 2003. 30 (1 septembre 2003). https://doi.org/10.1002/0471724254.
- [58] Tao, W. H., M. A. Prelas, et H. K. Yasuda. « Spatial distributions of electron density and electron temperature in direct current glow discharge ». *Journal of Vacuum Science & Technology A* 14, no 4 (1 juillet 1996): 2113-21. <u>https://doi.org/10.1116/1.580089</u>.
- [59] Ecker, G. « Theory of the Positive Column ». Proceedings of the Physical Society. Section B 67, no 6 (juin 1954): 485. <u>https://doi.org/10.1088/0370-1301/67/6/306</u>.
- [60] Dakin, James T. « A model of radial variations in the low-pressure mercury-argon positive column ». *Journal of Applied Physics* 60, no 2 (15 juillet 1986): 563-70. <u>https://doi.org/10.1063/1.337448</u>.
- [61] Delcroix, Physique des plasmas, Dunod Paris, 1966
- [62] Boisse-Laporte, C., A. Granier, E. Bloyet, P. Leprince, et J. Marec. « Influence of the excitation frequency on surface wave argon discharges: Study of the light emission ». *Journal of Applied Physics* 61, no 5 (1 mars 1987): 1740-46. <u>https://doi.org/10.1063/1.338071</u>.
- [63] Beneking, C., et P. Anderer. « Radiation Efficiency of Hg-Ar Surface Wave Discharges ». Journal of Physics D: Applied Physics 25, no 10 (octobre 1992): 1470. https://doi.org/10.1088/0022-3727/25/10/012.

- [64] Margot, J., M. Moisan, et A. Ricard. « Optical Radiation Efficiency of Surface-Wave-Produced Plasmas as Compared to DC Positive Columns ». *Applied Spectroscopy* 45, no 2 (1 février 1991): 260-71. <u>https://doi.org/10.1366/0003702914337443</u>.
- [65] FLASHLAMP Verre&Quartz : <u>https://www.flashlamps-vq.com/</u>
- [66] Moisan, M., C.M. Ferreira, Y. Hajlaoui, D. Henry, J. Hubert, R. Pantel, A. Ricard, et Z. Zakrzewski. « Properties and Applications of Surface Wave Produced Plasmas ». *Revue de Physique Appliquée* 17, no 11 (1982): 707-27. https://doi.org/10.1051/rphysap:019820017011070700.
- [67] Moisan, M., et Z. Zakrzewski. « Plasma Sources Based on the Propagation of Electromagnetic Surface Waves ». *Journal of Physics D: Applied Physics* 24, no 7 (juillet 1991): 1025. <u>https://doi.org/10.1088/0022-3727/24/7/001</u>.
- [68] Moisan, M., C. M. Ferreira, Y. Hajlaoui, D. Henry, J. Hubert, R. Pantel, A. Ricard, et Z. Zakrzewski. « Properties and Applications of Surface Wave Produced Plasmas ». *Revue de Physique Appliquée* 17, no 11 (1 novembre 1982): 707-27. https://doi.org/10.1051/rphysap:019820017011070700.
- [69] Ricard, A., J.E. Oseguera-Pena, L. Falk, H. Michel, et M. Gantois. « Active species in microwave postdischarge for steel-surface nitriding ». *IEEE Transactions on Plasma Science* 18, no 6 (décembre 1990): 940-44. <u>https://doi.org/10.1109/27.61507</u>.
- [70] Judée, F., S. Simon, C. Bailly, et T. Dufour. « Plasma-Activation of Tap Water Using DBD for Agronomy Applications: Identification and Quantification of Long Lifetime Chemical Species and Production/Consumption Mechanisms ». *Water Research* 133 (avril 2018): 47-59. https://doi.org/10.1016/j.watres.2017.12.035.
- [71] Judée, F., et T. Dufour. « Seed-packed dielectric barrier device for plasma agriculture: Understanding its electrical properties through an equivalent electrical model ». *Journal of Applied Physics* 128, no 4 (23 juillet 2020): 044901. <u>https://doi.org/10.1063/1.5139889</u>.
- [72] Moisan, Michel, Karim Boudam, Denis Carignan, Danielle Kéroack, Pierre Levif, Jean Barbeau, Jacynthe Séguin, et al. « Sterilization/Disinfection of Medical Devices Using Plasma: The Flowing Afterglow of the Reduced-Pressure N2-O2 Discharge as the Inactivating Medium ». *The European Physical Journal - Applied Physics* 63, no 1 (juillet 2013): 10001. https://doi.org/10.1051/epjap/2013120510.
- [73] Zhang, Q. Y., D. Q. Shi, W. Xu, C. Y. Miao, C. Y. Ma, C. S. Ren, C. Zhang, et Z. Yi. « Determination of vibrational and rotational temperatures in highly constricted nitrogen plasmas by fitting the second positive system of N2 molecules ». *AIP Advances* 5, no 5 (28 mai 2015): 057158. <u>https://doi.org/10.1063/1.4921916</u>.
- [74] Reyes, P.G., C. Torres, et H. Martínez. « Electron Temperature and Ion Density Measurements in a Glow Discharge of an Ar–N 2 Mixture ». *Radiation Effects and Defects in Solids* 169, no 4 (3 avril 2014): 285-92. <u>https://doi.org/10.1080/10420150.2013.860975</u>.
- [75] Kang, Namjun, Freddy Gaboriau, Soo-ghee Oh, et André Ricard. « Modeling and Experimental Study of Molecular Nitrogen Dissociation in an Ar–N 2 ICP Discharge ». *Plasma Sources Science* and Technology 20, no 4 (1 août 2011): 045015. <u>https://doi.org/10.1088/0963-0252/20/4/045015</u>.
- [76] Pintassilgo, C. D., J. Loureiro, et V. Guerra. « Modelling of a N2–O2 Flowing Afterglow for Plasma Sterilization ». *Journal of Physics D: Applied Physics* 38, no 3 (janvier 2005): 417. <u>https://doi.org/10.1088/0022-3727/38/3/011</u>.
- [77] Britun, N, M Gaillard, A Ricard, Y M Kim, K S Kim, et J G Han. « Determination of the Vibrational, Rotational and Electron Temperatures in N 2 and Ar–N 2 Rf Discharge ». *Journal of Physics D: Applied Physics* 40, no 4 (21 février 2007): 1022-29. <u>https://doi.org/10.1088/0022-3727/40/4/016</u>.

- [78] Espinho, S., S. Hofmann, J. M. Palomares, et S. Nijdam. « The Influence of the Ar/O2 Ratio on the Electron Density and Electron Temperature in Microwave Discharges ». *Plasma Sources Science and Technology* 26, no 10 (octobre 2017): 105008. <u>https://doi.org/10.1088/1361-6595/aa8d04</u>.
- [79] Turner, B.P., M.G. Ury, Y. Leng, et W.G. Love. «Sulfur Lamps—Progress in Their Development ». *Journal of the Illuminating Engineering Society* 26, no 1 (1 janvier 1997): 10-16. https://doi.org/10.1080/00994480.1997.10748162.
- [80] Johnston, C W, J Jonkers, et J J A M Van Der Mullen. « Operational Trends in the Temperature of a High-Pressure Microwave Powered Sulfur Lamp ». *Journal of Physics D: Applied Physics* 35, no 20 (21 octobre 2002): 2578-85. <u>https://doi.org/10.1088/0022-3727/35/20/317</u>.
- [81] Johnston, C W, H W P Van Der Heijden, G M Janssen, J Van Dijk, et J J A M Van Der Mullen. « A Self-Consistent LTE Model of a Microwave-Driven, High-Pressure Sulfur Lamp ». *Journal of Physics D: Applied Physics* 35, no 4 (21 février 2002): 342-51. <u>https://doi.org/10.1088/0022-3727/35/4/309</u>.
- [82] Adams, John W. « Hill Air Force Base Case Study: New Lighting Technology Installation », s. d.
- [83] Mrowec, Stanistaw. « The Problem of Sulfur in High-Temperature Corrosion ». Oxidation of Metals 44, no 1-2 (août 1995): 177-209. <u>https://doi.org/10.1007/BF01046727</u>.
- [84] Baële, Pierre, Alexandre Bès, Ana Lacoste, et Jacques Pelletier. « Sulfur: An Alternative to Mercury for UV Emission in Low-Pressure Low-Power Fluorescent Discharges ». Journal of Physics D: Applied Physics 52, no 32 (juin 2019): 32LT02. <u>https://doi.org/10.1088/1361-6463/ab233e</u>.
- [85] Gaydon, A. g. *The Identification Of MolecularSpectra*,1941. http://archive.org/details/in.ernet.dli.2015.212925.
- [86] Gilles, Paul W. « Vapor Pressure of the Chemical Elements. » Journal of the American Chemical Society 86, no 24 (décembre 1964): 5702-3. <u>https://doi.org/10.1021/ja01078a076</u>.
- [87] Berkowitz, J., et J. R. Marquart. « Equilibrium Composition of Sulfur Vapor ». *The Journal of Chemical Physics* 39, no 2 (29 juin 2004): 275-83. <u>https://doi.org/10.1063/1.1734241</u>.
- [88] Avtaeva, S. V., et A. A. Heneral. « The Pulsed Periodic Discharge in Mixtures of Ar with Sulfur Vapour ». *Plasma Chemistry and Plasma Processing* 40, no 4 (1 juillet 2020): 839-55. <u>https://doi.org/10.1007/s11090-020-10067-1</u>.
- [89] « Stable pure sulfur discharges and associated spectra | The Journal of Chemical Physics | AIP Publishing ». Consulté le 16 janvier 2024. <u>https://pubs.aip.org/aip/jcp/article-abstract/73/4/1551/89269/Stable-pure-sulfur-discharges-and-associated</u>.
- [90] Dutta, Arunava, et Leonard V. Dullea. Method of coating phosphors of fluorescent lamp glass. United States US5441774A, filed 23 mai 1994, et issued 15 août 1995. <u>https://patents.google.com/patent/US5441774A/en?oq=US5441774</u>.
- [91] Kim, Yoon Hwa, Noolu S. M. Viswanath, Sanjith Unithrattil, Ha Jun Kim, et Won Bin Im. « Review—Phosphor Plates for High-Power LED Applications: Challenges and Opportunities toward Perfect Lighting ». ECS Journal of Solid State Science and Technology 7, no 1 (6 octobre 2017): R3134. <u>https://doi.org/10.1149/2.0181801jss</u>.
- [92] Hecht, Selig. « The visual discrimination of intensity and the Weber-Fechner law». *The Journal of General Physiology* 7, no 2 (20 novembre 1924): 235-67.
- [93] PGOPHER, A Program for Simulating Rotational, Vibrational and Electronic Spectra, C. M. Western, Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, 186 221-242 (2017) doi:10.1016/j.jqsrt.2016.04.010.
- [94] Meyer-Arendt, Jurgen R. « Radiometry and Photometry: Units and Conversion Factors ». Applied Optics 7, no 10 (1 octobre 1968): 2081-84. <u>https://doi.org/10.1364/AO.7.002081</u>

Résumé. Le travail de cette thèse, financé l'ANR-20-CE05-0012 ADELINE, porte sur l'élaboration d'une nouvelle génération de lampes fluorescentes exemptes de Hg et Ga. Elle s'appuie sur l'émission UV + Visible d'une décharge moléculaire à basse pression et sur la conversion subséquente dans le domaine du Visible par des luminophores adaptés au spectre d'émission de la décharge. L'utilisation d'émetteurs moléculaires, généralement réactifs à haute température, exige le remplacement de la cathode chaude telle qu'utilisée dans les lampes fluorescentes Ar-Hg. L'originalité de ce travail consiste dans sa substitution par un applicateur d'onde de haute fréquence (HF) pour produire un plasma comparable à celui de lueur négative (LN), mais à chute cathodique fortement réduite (cathode froide sans bombardement ionique). Ce plasma peut être avantageusement complété par un plasma de colonne positive (CP) obtenu lorsqu'une alimentation hybride HF&DC est appliquée. Dans ce travail, une décharge HF à onde de surface obtenue par un changement de configuration de l'applicateur est également proposée et étudiée pour l'application à l'éclairage. L'objectif était la maximisation de l'efficacité lumineuse de la lampe, ce qui passe par l'optimisation à la fois du flux énergétique de la décharge et de la conversion UV-Visible par les luminophores. Une part importante du travail de thèse a été donc consacrée à la détermination, par différentes approches expérimentales et numériques, des conditions opératoires (géométrie de l'applicateur d'onde HF et du tube de décharge, tension DC) en vue de l'optimisation du flux énergétique de la décharge. L'étude conduite dans l'Ar pur a démontré l'apport énergétique favorable du plasma de CP (rendement énergétique de 6% pour une décharge HF&DC contre 1,5 % pour une décharge HF), apport d'autant plus bénéfique que la longueur de la CP est grande. Toutefois, l'écart important d'émission obtenu dans nos conditions de travail entre les différentes zones de la décharge (LN et CP) rend finalement les décharges HF à onde de surface plus appropriées à l'application visée (rendement énergétique de 12% pour une décharge HF à onde de surface contre 6% pour une décharge HF&DC). L'étude de mélanges réactifs a clairement démontré l'avantage du mélange Ar- S_2 sur le mélange Ar- N_2/O_2 . Cet avantage résulte d'une meilleure répartition spectrale de l'émission pour Ar-S₂ avec un impact avantageux, d'une part, sur le rendement énergétique d'émission de la décharge dans le domaine UV+Visible (émission IR réduite) et, d'autre part, sur le rendement de conversion par les luminophores. Un mélange approprié de luminophores d'absorption UV a permis l'élaboration d'un dispositif de lampe (décharge HF à onde de surface en tube scellé) des performances visuelles proches de celles des lampes Ar-Hg. Comparativement, l'efficacité lumineuse de la lampe à onde de surface mise en œuvre est nettement inférieure à cause de deux principaux facteurs : rendement électrique de la décharge HF et rendement énergétique d'émission. Le 1^{er} est fortement limité par des contraintes technologiques qui, par exemple, n'ont pas permis d'éradiquer les fuites de rayonnement HF et le 2^{ème} est inhérent à la dépense énergétique requise pour la dissociation de S_8 en S_2 .

Abstract. This thesis, funded by the ANR-20-CE05-0012 ADELINE project, focuses on the development of a new generation of mercury- and gallium-free fluorescent lamps. It is based on the UV + Visible emission from a low-pressure molecular discharge and its conversion into the visible range through phosphors suited to the emission spectrum of the discharge. The use of molecular emitters, typically reactive at high temperatures, requires the replacement of the hot cathode, as used in Ar-Hg fluorescent lamps. This work lies in the substitution of the hot cathode with a high-frequency (HF) wave applicator, which generates a plasma comparable to that of a negative glow (NG) but with a significantly reduced cathode fall. This plasma can be advantageously used with a positive column (PC) plasma, achieved when a hybrid HF&DC power supply is applied. Additionally, a surface-wave HF discharge, obtained by modifying the applicator configuration, is proposed and studied for lighting applications. The aim was to maximize the luminous efficiency of the lamp, which involved optimizing both the energy flux of the discharge and the UV-to-visible conversion by the phosphors. A significant part of this work was dedicated to the determination with experimental and numerical approaches, of the operating conditions (HF wave applicator and discharge tube geometry, DC voltage) that optimize the energy flux of the discharge. The study conducted in pure argon demonstrated the beneficial energy contribution of the PC plasma (6% energy efficiency for an HF&DC discharge versus 1.5% for an HF discharge), a benefit that increases with the length of the PC. However, the significant emission difference observed under our working conditions between the various regions of the discharge (NG and PC). This made surface-wave HF discharges more suitable for the intended application. The study of reactive mixtures clearly showed the advantage of the Ar-S₂ mixture over the Ar-N₂/O₂ mixture. This advantage is due to a better spectral emission distribution for $Ar-S_2$. This has a favorable impact on both the energy efficiency of the discharge emission in the UV+Visible range (reduced IR emission) and the conversion efficiency by the phosphors. A suitable combination of UV-absorbing phosphors enabled the development of a lamp device (surface-wave HF discharge in a sealed tube) with visual performance close to that of Ar-Hg lamps. However, the luminous efficiency of the implemented surface-wave lamp remains significantly lower due to two main factors: the electrical efficiency of the HF discharge and the energy efficiency of emission. The former is strongly limited by technological constraints, such as the inability to eliminate HF radiation leaks, while the latter is inherent to the energy required for the dissociation of S_8 into S_2 .