Électroluminescence gazeuse : étude de la brillance et de l'intensité de courant

Jean Hoarau

▶ **To cite this version:**

Jean Hoarau. Électroluminescence gazeuse : étude de la brillance et de l'intensité de courant. Journal de Physique, 1968, 29 (10), pp.857-868. 10.1051/jphys:019680029010085700 . jpa-00206724

HAL Id: jpa-00206724
https://hal.science/jpa-00206724

Submitted on 4 Feb 2008

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

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

ÉLECTROLUMINESCENCE GAZEUSE : ÉTUDE DE LA BRILLANCE ET DE L'INTENSITÉ DE COURANT

Par JEAN HOARAU,

Laboratoire de Physique M.P. 1, Faculté des Sciences, place Victor-Hugo, Marseille (3e).

(Reçu le 17 avril 1968.)

Résumé. — Une cellule électroluminescente gazeuse est constituée de deux armatures planes dont l'une est métallique et l'autre en verre électroconducteur recouvert de mica. Le gaz (air ou azote) d'une épaisseur de 20 à 80 μ est soumis à un champ alternatif de 10^5 à 10^6 V/cm. L'étude de la brillance de cette cellule gazeuse montre certaines analogies entre électroluminescence gazeuse et électroluminescence de solides organiques lorsque nous comparons l'action de la tension et de la fréquence, et que nous observons les spectres d'émission et les ondes de brillance. L'étude de l'intensité de courant fait apparaître les analogies et différences entre l'effet couronne en champ alternatif et l'effet dans les cellules gazeuses soumises au même champ.

Abstract. — A gaseous electroluminescent cell is constructed of a metal electrode and an electrode of conducting glass covered with film of mica (thickness 30 μ) necessary to avoid electrical breakdown. The gas (air or nitrogen) is placed between the film of mica and the metal electrode. The thickness of gaseous layer varies from 20 to 80 μ and alternating fields from 10^5 to 10^6 V/cm are employed. The study of the brightness emitted by this gaseous electroluminescent cell shows some analogies between gaseous electroluminescence and that of organic solids. These analogies are shown if we compare the effect of applied voltage and frequency on the brightness and if we observe the emission spectra and brightness waves. Study of the current shows analogies and differences between the alternating-current corona and discharge into gaseous electroluminescent cell.

I. **Introduction.** — A la suite des travaux de Bernanose et Vouaux [1 à 4], nous nous sommes proposé d'examiner si des isolants organiques tels que l'anthracène, le phénanthrène peuvent émettre de la lumière sous l'effet d'un champ alternatif. Nous avons pu observer que des cellules réalisées à partir de produits organiques présentaient le phénomène classique de décharge gazeuse (1).

C'est cette constatation qui nous a amené à réaliser et étudier des cellules électroluminescentes gazeuses de mêmes caractéristiques que les cellules organiques de Bernanose et à comparer les résultats obtenus dans les deux cas.

Dans cet article, nous développerons, d'une part, la comparaison entre électroluminescences du gaz et du solide organique tel que l'orangé d'acridine, et d'autre part quelques résultats propres à l'électroluminescence gazeuse : évolution en fonction de la tension du maximum de brillance correspondant à une pression optimale caractéristique du gaz considéré, étude des analogies et différences entre l'effet couronne et la décharge gazeuse des cellules électroluminescentes.

II. **Généralités.** — 1. PHÉNOMÈNE D'ÉLECTROLUMINESCENCE. — On emploie de plus en plus le terme d'électroluminescence pour désigner la propriété que possèdent certaines substances solides de s'illuminer sous l'action d'un champ électrique *variable*. Ici, pour des raisons de commodité, nous parlerons d'électroluminescence minérale, organique ou gazeuse suivant la nature du diélectrique soumis au champ variable. Une cellule électroluminescente à diélectrique gazeux ou

(1) Dans un mémoire récapitulatif d'un travail de thèse actuellement en préparation, nous développons les conditions d'apparition dans certains diélectriques de microbulles dans lesquelles se produit la décharge gazeuse. Quelques auteurs [5, 6] ont étudié l'électroluminescence organique en plaçant leurs cellules sous un vide suffisant (10^{-5} mm Hg) de façon à éliminer la décharge gazeuse. Cependant, nous pensons que, dans le cas où les bulles sont emprisonnées dans le diélectrique du condensateur électroluminescent, le vide autour de la cellule ne suffirait pas à les dégazer.

Article published online by EDP Sciences and available at http://dx.doi.org/10.1051/jphys:01968002901008570

solide est constituée de deux armatures dont l'une est métallique et l'autre en matériau transparent. Il s'agit en général d'une lame de verre rendue conductrice en surface (2) (*fig.* 1). Le diélectrique dont l'épaisseur varie de 20 à 80 μ est soumis à un champ électrique

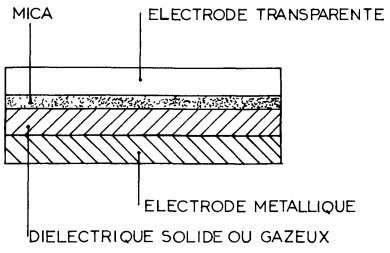

FIG. 1.

élevé (10^5 à 10^6 V/cm). Pour éviter le claquage, on ajoute une lame de mica entre les armatures; cette lame est généralement collée à l'électrode transparente.

Remarque. — Darveniza [7], Jones et Angerer [8] montrent que certains composés organiques fluorescents solides ou liquides émettent de la lumière sous l'effet d'un champ continu. Dans ce cas, nous notons d'une part que la tension appliquée à la cellule est voisine de la tension disruptive du matériau utilisé et d'autre part que la cellule n'est pas protégée du « claquage » par une substance à haute rigidité diélectrique telle que le mica. En présence de ce matériau, nos cellules à gaz ne s'illuminent pas sous l'action d'un champ continu.

2. ÉLECTROLUMINESCENCE MINÉRALE [9, 10, 11]. — Ce phénomène a été découvert par Destriau. Parmi les différents mécanismes [12, 13] proposés pour expliquer l'effet Destriau, citons le processus d'excitation par chocs formulé par l'auteur [14]. Suivant cette hypothèse, l'auteur admet qu'un centre luminogène est excité par le choc des électrons de la bande de conductivité accélérés par le champ. L'émission lumineuse a lieu lorsque l'électron retombe dans le centre. Curie [15] donne un schéma clair des phases d'excitation des centres et d'émission de lumière.

Destriau montre que la brillance (3) B des cellules minérales est donnée par la relation bien vérifiée par l'expérience :

$$B = AE^2 e^{-b/E} \qquad (1)$$

avec :

$$b = h\nu/e\lambda_m \qquad (2)$$

A étant une constante, E le champ, $h\nu$ quantum d'énergie, λ_m libre parcours moyen des électrons dans la direction du champ.

(2) Dans la figure 1, c'est la surface inférieure du verre qui a été rendue conductrice par pulvérisation à 700° d'une solution à base de chlorure d'étain.

(3) Actuellement, on dit luminance. Ici nous continuons à utiliser le mot brillance qui est encore usité en électroluminescence du solide.

Destriau montre que, par suite d'un champ antagoniste venant des charges d'espace, il existe entre le champ appliqué E_0 et le champ interne E figurant dans (1) la relation :

$$E = \frac{E_0}{\sqrt{1 + (4\pi/\varepsilon\rho\omega)^2}} \qquad (3)$$

ε constante diélectrique du milieu, ρ résistivité, ω pulsation. E est en avance de phase par rapport à E_0 d'un angle φ tel que :

$$\operatorname{tg}\varphi = 1/\varepsilon\rho\omega. \qquad (4)$$

Ce champ E explique que les ondes de brillance (4) soient plus ou moins décalées en avant de l'angle φ par rapport à la tension appliquée.

3. ÉLECTROLUMINESCENCE ORGANIQUE. — Découvert par Bernanose [1], ce phénomène a lieu lorsqu'on soumet à un champ électrique alternatif des pellicules de cellophane ou de papier imprégnées d'un composé organique fluorescent (dérivé de l'acridine).

L'ensemble des résultats obtenus par Bernanose montre que :

— la formule de Destriau (1) est convenablement vérifiée,
— l'augmentation de la fréquence à tension constante fait croître la brillance qui se sature aux fréquences élevées (10^3 à 10^5 Hz),
— les spectres d'émission d'électroluminescence sont les mêmes que ceux de fluorescence avec quelquefois des bandes d'émission nouvelles fournies peut-être par électroluminescence.

Pour expliquer l'électroluminescence, Bernanose avait pensé initialement à une activation directe des molécules par le champ électrique; il s'est ensuite demandé s'il n'était pas préférable de supposer que l'excitation des molécules est due aux électrons extérieurs accélérés par le champ (conception de Destriau).

Nous avons signalé quelques auteurs [5, 6, 7, 8] qui, à la suite de Bernanose, ont étudié l'électroluminescence organique. D'autres auteurs [16, 17, 18] ont publié des travaux sur ce phénomène. Étant donné la diversité des résultats obtenus, il est difficile de les rappeler ici. Nous nous bornons à noter les quelques points suivants :

Le processus d'excitation des centres luminescents par chocs d'électrons accélérés par le champ (conception de Destriau) n'est pas le seul admis pour expliquer l'électroluminescence organique. D'autres mécanismes sont proposés pour interpréter ce phénomène. Citons par exemple la recombinaison électron-trou évoquée en particulier pour expliquer l'électroluminescence retardée signalée par Sano et ses collaborateurs [18].

Les électrons responsables de l'excitation des centres luminescents sont d'origines diverses. Ils proviennent

(4) Courbe représentant la variation de la brillance en fonction du temps.

soit des électrodes [8, 18], soit d'impuretés telles que le « carbon black » [17] qui peuvent en émettre par effet de champ, soit encore des phénomènes d'avalanches analogues à ceux qui se produisent dans la décharge disruptive [7].

Signalons que d'autres formules, autres que celles de Destriau, ont été suggérées pour rendre compte de l'allure des courbes donnant la brillance B en fonction de la tension appliquée V. En particulier, Hartman et Armstrong [5] proposent une relation entre B et V dans laquelle la fonction représentant $f(V)$ est formée de deux facteurs dont l'un est proportionnel à $e^{-\text{const.}V^{1/2}}$ et l'autre à $e^{-\text{const.}V}$.

4. ÉLECTROLUMINESCENCE GAZEUSE. — Pour comparer les résultats obtenus en électroluminescences organique, anorganique et gazeuse, nous avons fait différents travaux [19 à 21] sur l'électroluminescence gazeuse dont l'étude constitue ici un exposé plus complet.

Avant de présenter l'ensemble des résultats, nous rappelons brièvement deux processus principaux qui semblent intervenir dans les cellules gazeuses.

Processus α (mécanisme de Townsend) :

α est le nombre de paires d'ions (5) produits par un électron sur un trajet de 1 cm dans la direction du champ. Townsend montre [22] que :

$$\frac{\alpha}{p} = A e^{-\frac{B}{E/p}} \qquad (5)$$

avec :

$$A = 1/\lambda_m p \quad \text{et} \quad B = V_i/\lambda_m p$$

p pression du gaz, λ_m libre parcours moyen de l'électron et V_i potentiel d'ionisation effective.

Townsend montre que α passe par un maximum pour une valeur p_m de la pression du gaz étudié telle que :

$$p_m = E/B.$$

Processus σ (mécanisme « streamers ») [23, 24, 25] :

L'électron initial donne naissance à une avalanche d'électrons secondaires qui laisse derrière elle une charge d'espace positive produisant des traits lumineux instables appelés canaux ou « streamers ». Ce processus se rencontre surtout dans les gaz impurs (air) et nécessite un minimum de distance interélectrode, des champs et pressions de gaz élevés.

Remarque. — Par analogie avec le coefficient d'ionisation α/p, on peut définir un coefficient d'excitation ε/p qui passe par un maximum comme α/p pour des valeurs optimales de E/p variant suivant le gaz.

III. **Dispositifs expérimentaux.** — La cellule que nous avons le plus souvent utilisée (*fig.* 2) est formée de deux espaces interélectrodes A et B en forme de

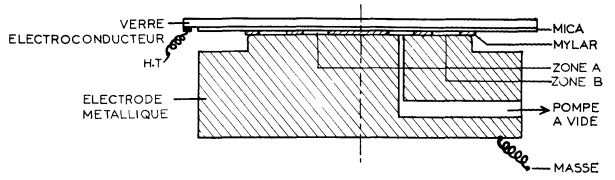

FIG. 2.

couronne et de 40 μ d'épaisseur. Dans la zone A, le gaz est à la pression atmosphérique, alors que dans la zone B on peut faire varier la pression de 0 à 760 mm Hg.

Un autre type de cellule (*fig.* 3) a été utilisé pour comparer l'électroluminescence et la luminescence

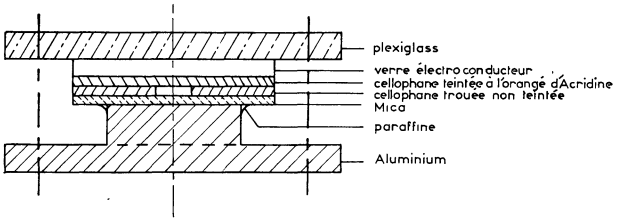

FIG. 3.

provoquée par décharge gazeuse de l'orangé d'acridine. La décharge a lieu dans une petite cavité contenant de l'air sous pression atmosphérique, d'épaisseur 20 μ et placée entre le mica et la cellophane teintée ou non.

Les cellules sont alimentées soit en signal sinusoïdal de 50 à 10^5 Hz, de 200 à 2 500 volts efficaces, soit en signaux carrés de 50 à 1 000 Hz, de 100 à 1 000 volts crête à crête, soit encore en signaux redressés sinusoïdaux à une alternance.

La mesure des intensités de lumière est faite grâce à un photomultiplicateur dont le courant est envoyé soit à un picoampèremètre, soit à un oscilloscope.

Pour l'étude spectrographique, nous utilisons un spectrographe et un spectrophotomètre.

IV. **Résultats et discussions.** — 1. ÉTUDE DE LA BRILLANCE EN FONCTION DE LA PRESSION, DE LA TENSION ET DE LA FRÉQUENCE. — a) *Effet de la pression et de la tension.* — Les courbes des figures 4 nous montrent que la brillance dans le cas de l'azote passe par un maximum pour une tension donnée. L'augmentation de tension fait croître le maximum de brillance en le déplaçant vers les fortes pressions.

Pour l'air (*fig.* 5), la brillance présente deux maximums qui croissent avec l'augmentation de tension, tandis que les pressions optimales se déplacent vers les fortes pressions.

Si nous maintenons constantes les pressions optimales correspondant aux maximums de brillance, nous constatons que les valeurs demeurent constantes en fonction du temps, sauf pour le deuxième maximum

(5) Chaque paire d'ions est composée d'un électron et d'un ion positif.

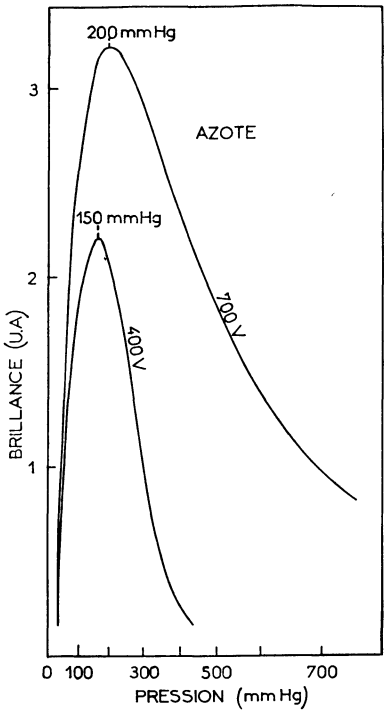

FIG. 4.

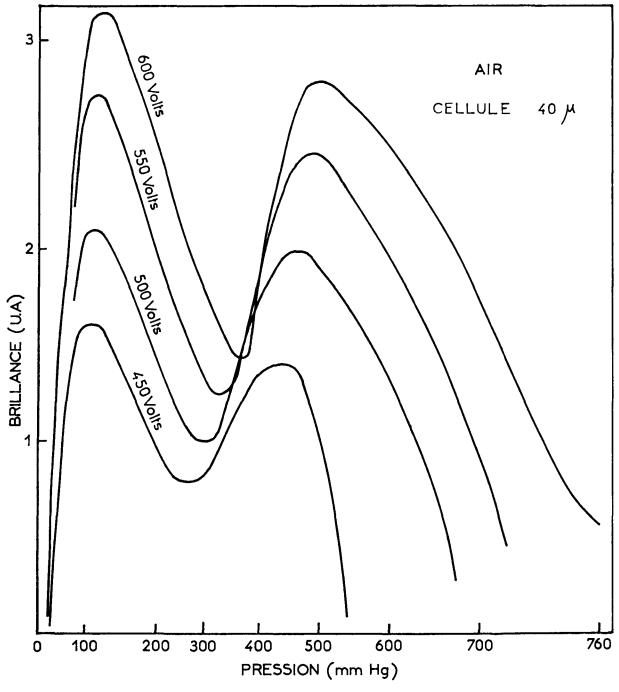

FIG. 5.

de l'air qui décroît. L'instabilité de ce maximum sera étudiée plus loin (§ $IV_{4,5}$).

Pour apparaître, ce deuxième maximum nécessite une épaisseur d'air supérieure à 20 μ.

Les maximums d'intensité lumineuse obtenus pour des pressions optimales caractéristiques des gaz étudiés, pour une distance interélectrode et un champ donnés, étaient prévisibles. En effet, le coefficient d'excitation des molécules de gaz ionisées ou neutres (§ II_4) passe par un maximum pour une valeur optimale de E/p, donc pour une pression optimale dépendant de la distance interélectrode, du champ électrique et du gaz considéré.

Les fonctions d'excitation peuvent être représentées en fonction de E/p ou de $e\lambda_m E$ (λ_m libre parcours moyen de l'électron dans le gaz). En effet, λ_m étant inversement proportionnel à la pression, les quantités E/p et $e\lambda_m E$ sont proportionnelles [26, *page* 86].

Il existe donc une correspondance entre les valeurs optimales de E/p et $e\lambda_m E$. Dans le cas de N_2, connaissant le rapport E/p ($E = 10^5$ V/cm et $p = 200$ mm Hg), on doit retrouver l'énergie optimale des électrons excitateurs. En effet, la théorie cinétique [26, *page* 80] permet de calculer λ_m qui est égal à $1{,}4 \times 10^{-4}$ cm, pour 200 mm Hg.

D'où $e\lambda_m E = 14$ eV, ordre de grandeur proche de la valeur à trouver qui est 15,5 eV [27].

Dans le cas où l'excitation est produite uniquement par choc électronique sur molécules neutres, la quantité optimale de E/p doit être constante. Toute augmentation de E produit une croissance de la pression optimale : ce qui explique le déplacement du maximum de brillance de l'azote vers les pressions élevées lorsque la tension croît.

En fait, le champ appliqué E croît plus vite que p pour l'azote et l'air. E/p = constante n'est plus vérifiée. Pour retrouver E/p constante (ou l'énergie optimale constante), il faudrait considérer pour E la valeur du champ interne, résultante du champ appliqué et du champ de charges d'espace, résultante qui augmenterait moins vite que le champ appliqué.

Remarque. — Le maximum de brillance obtenu pour une pression optimale rappelle le maximum de fluorescence et d'électroluminescence organique correspondant à une concentration optimale du produit fluorescent [4].

Pression et concentration jouant un rôle analogue, on peut expliquer ces résultats par un même modèle. Aux faibles concentrations, le rendement moyen des molécules est élevé, mais leur nombre diminuant par dilution, l'émission de lumière décroît. Par contre, aux fortes concentrations, les molécules étant trop proches les unes des autres se désactivent mutuellement sans émission de lumière. Entre ces concentrations extrêmes, il existe une concentration optimale pour laquelle l'émission est maximale.

b) *Effet de la tension.* — Nous avons étudié précédemment l'effet de la tension sur le déplacement de la pression optimale de brillance. Ici, nous étudions la variation de la brillance à pression donnée en fonction de la tension.

Les courbes donnant $\log B$ en fonction de $1/V$

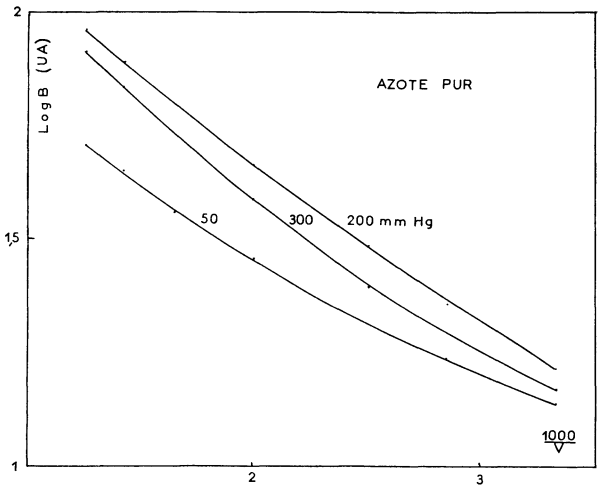

FIG. 6.

sont décroissantes à concavité tournée vers le haut aussi bien dans le cas de l'azote (*fig.* 6) que dans celui de l'air.

La formule de Destriau (1) valable en électroluminescences organique et anorganique, prévoyant cette concavité vers le haut, serait donc applicable également en électroluminescence gazeuse.

Le calcul du libre parcours moyen λ_m des électrons à partir de la pente *b* formule (1) de la courbe donnant Log *B* en fonction de $1/V$ donne des valeurs de λ_m proches de celles trouvées par la théorie cinétique.

c) *Effet de la fréquence.* — La figure 7 montre que la brillance croît avec la fréquence et commence à se saturer vers 10 000 Hz. Le même phénomène est observé aussi bien en électroluminescence organique qu'anorganique [3, 15].

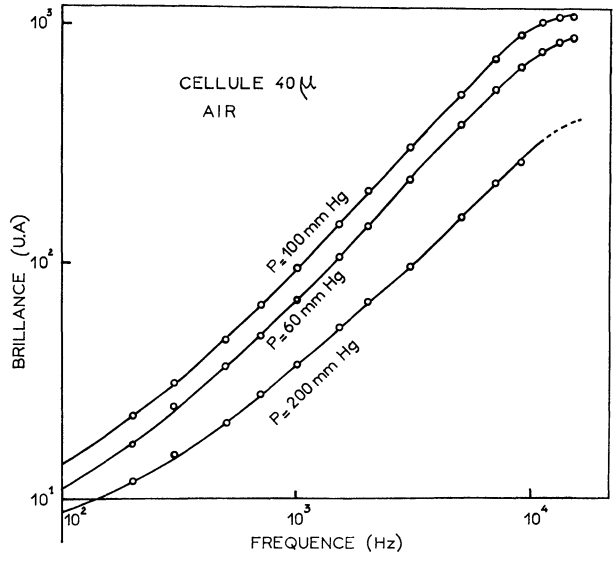

FIG. 7.

Si l'on se rappelle que l'émission lumineuse a lieu chaque fois que le champ électrique varie dans un sens ou dans un autre, il est normal de penser que, plus le nombre de cycles par seconde est grand, plus la brillance sera importante. D'autre part, la croissance linéaire aux basses fréquences peut s'expliquer ainsi. Chaque alternance d'onde de brillance correspond à la croissance et à la décroissance d'un nuage d'électrons libres; la quantité de lumière correspondant à chaque alternance serait indépendante de la fréquence si celle-ci était assez basse pour que le nuage d'électrons excitateurs ait le temps de disparaître avant la fin de l'alternance. Dans ce cas, la brillance croît linéairement. Aux fréquences élevées, les électrons excitateurs ne sont pas tous « utilisés » avant que commence l'alternance suivante. D'où une baisse de lumière et l'apparition de la saturation.

IV$_2$. **Étude du déphasage onde de tension-onde de brillance.** — Nous montrons que ce déphasage dépend de plusieurs paramètres : pression du gaz, tension, fréquence, épaisseur de la cellule. Pour étudier l'influence des trois premiers facteurs, nous considérons la lumière émise par décharge gazeuse dans la partie centrale A de la figure 2.

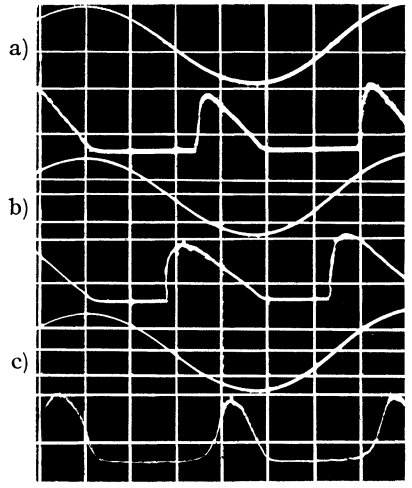

FIG. 8. — a) 500 mm Hg ; b) 100 mm Hg ; c) 50 mm Hg.

1. EFFET DE LA PRESSION. — Les oscillogrammes de la figure 8 obtenus pour une tension sinusoïdale de 600 V et une fréquence de 100 Hz montrent que :

— L'amplitude de l'onde de brillance passe par un maximum pour 100 mm Hg.

— Le déphasage avant de l'onde de brillance par rapport à l'onde de tension passe par un maximum en même temps que la brillance.

Ce résultat s'explique. A la brillance maximale correspond une intensité de courant maximale (§ IV$_{4,3}$), donc une résistivité minimale de la cellule. En tenant compte de la formule (4), on voit que la résistivité ρ étant minimale, la valeur de tg φ est maximale.

2. Effet de la tension. — La figure 9 montre que pour une pression de 100 mm Hg et une fréquence de 100 Hz, l'augmentation de tension entraîne non

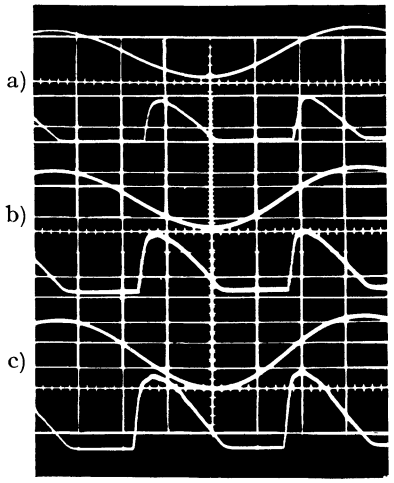

Fig. 9. — a) 450 V ; b) 550 V ; c) 650 V.

seulement la croissance de l'amplitude de l'onde de brillance mais aussi celle du déphasage onde de tension-onde de brillance. Ce phénomène n'a pas été signalé en électroluminescences organique et anorganique à cause peut-être de sa faible importance.

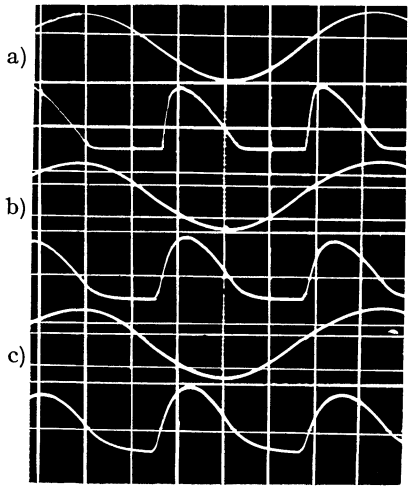

Fig. 10. — a) 100 Hz ; b) 300 Hz ; c) 500 Hz.

3. Effet de la fréquence. — L'examen des oscillogrammes de la figure 10 montre que :

a) Le déphasage avant du maximum de brillance par rapport au maximum de tension appliquée décroît quand la fréquence augmente.

b) L'extinction entre deux alternances d'ondes de brillance est totale à la fréquence de 100 Hz alors qu'il y a traînage à l'extinction pour 500 Hz.

Il est important de noter que les observations faites ci-dessus (3 *a*, *b*) peuvent se transposer au cas des cellules électroluminescentes à l'orangé d'acridine [2].

Pour déterminer la variation relative du déphasage en fonction de la fréquence, il est possible d'appliquer la formule (4) de Destriau. En supposant en première approximation que ε et ρ sont indépendants de ω, le calcul de la variation relative de ce déphasage donne en passant de 100 Hz à 500 Hz :

$$\operatorname{tg} \varphi_1 / \operatorname{tg} \varphi_2 = \omega_2/\omega_1 = 5.$$

L'expérience donne ici 4,2 pour ce rapport.

La formule (4) valable en électroluminescence minérale semble applicable en électroluminescence gazeuse.

4. Influence de l'épaisseur du gaz. — Deux cellules de distances interélectrodes 20 et 80 μ contenant de l'air à la même pression (400 mm Hg) soumises à la même tension (500 V) et à la même fréquence (50 Hz) donnent des ondes de brillance présentant entre elles une différence de phase (*fig.* 11 a) et 11 b)).

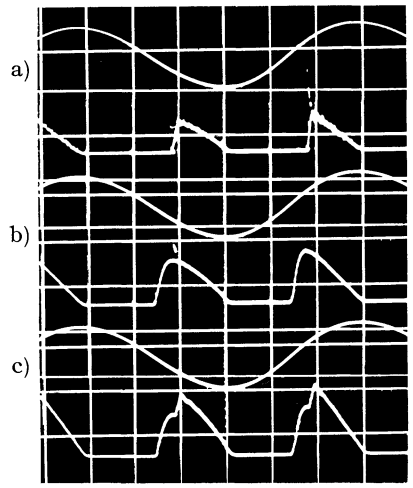

Fig. 11. — a) 80 μ ; b) 20 μ ; c) 20 μ et 80 μ.

Phénomène d'apparition de doubles pics sur l'onde de brillance. — Nous avons vu dans l'étude oscillographique précédente que le maximum de brillance se déplace par rapport au maximum de tension lorsque l'un des facteurs suivants varie : pression du gaz, tension, fréquence, épaisseur du gaz.

Il est clair que deux cellules présentant pour l'un des paramètres cités deux valeurs différentes, les autres étant identiques par ailleurs, présenteront deux ondes déphasées et leur superposition donnera une onde de brillance à deux pics. C'est ce que nous obtenons dans les deux cas suivants.

Soient deux cellules de même épaisseur et juxtaposées (*fig.* 2) soumises à la même tension (650 V) et à la même fréquence (50 Hz). Les pressions dans les cellules A et B sont respectivement 300 et 760 mm Hg.

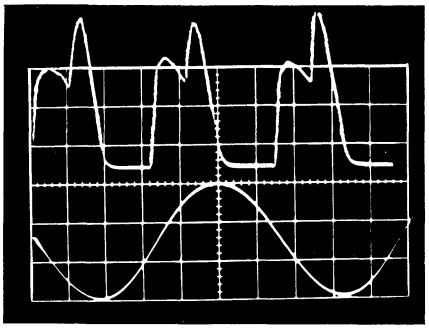

FIG. 12.

L'observation simultanée de deux cellules donne une onde de brillance à deux maximums (*fig.* 12).

L'alternance d'onde de brillance formée de deux pics dans la figure 11 c est la résultante des ondes de brillance 11 a et 11 b correspondant respectivement à deux épaisseurs différentes (§ $IV_{2,4}$). Il est important de noter qu'une variation d'épaisseur de la zone gazeuse d'une cellule peut être responsable de l'apparition d'un second pic sur l'onde de brillance.

Ces ondes de brillance à deux pics rappellent celles obtenues en électroluminescences minérale [28, 29] et organique [16]. Il serait possible d'obtenir le même phénomène si l'on observait en même temps l'électroluminescence du solide (phénomène pur de Destriau) et celle d'un gaz occlu dans le solide.

Retenons de cette remarque que la présence de deux pics sur une alternance de brillance ne constitue pas un critère d'électroluminescence du solide.

IV_3. **Étude spectrographique.** — Poursuivant la comparaison entre électroluminescences gazeuse et organique, nous nous limitons à l'analyse spectrale de la lumière émise à travers la cellophane teintée d'orangé d'acridine excitée par le rayonnement ultra-

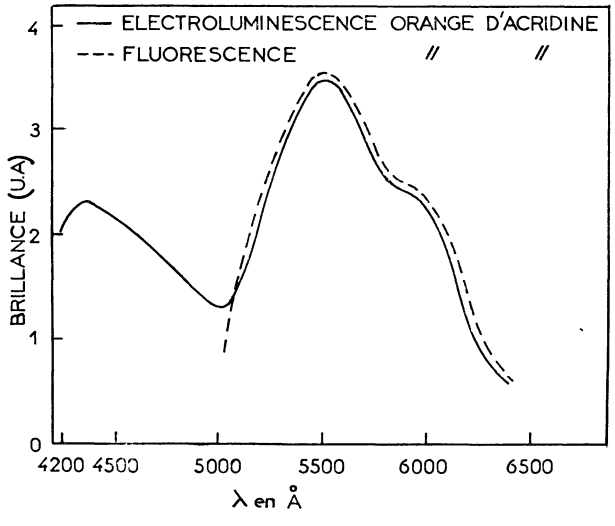

FIG. 13.

violet de la décharge gazeuse (cellule, *fig.* 3). La courbe spectrale obtenue au spectrophotomètre est représentée par celle en traits pleins de la figure 13. Nous voyons qu'en plus de la courbe de fluorescence de l'orangé d'acridine représentée en pointillé, nous obtenons une courbe d'émission située vers 4 350 Å provenant de la lumière des effluves non absorbée par l'orangé d'acridine.

Cette courbe spectrale est identique à celle obtenue en électroluminescence de l'orangé d'acridine par Vouaux et Bernanose [30]. Vouaux conclut que c'est l'électroluminescence qui fournit la bande nouvelle située vers 4 350 Å. Or, cette bande d'émission supplémentaire se produit également dans la cellule à décharge gazeuse figure 3. Nous pouvons donc dire qu'aucune différence n'apparaît entre le spectre d'électroluminescence de l'orangé d'acridine et celui d'émission d'une décharge gazeuse à travers la cellophane teintée.

Nous serions tenté de penser que, si les cellules électroluminescentes fabriquées par Bernanose et Vouaux présentaient des microbulles, celles-ci seraient responsables de la « bande d'émission » nouvelle observée vers 4 350 Å et provenant d'émission violette non absorbée.

Nous avons constaté que dans certaines cellules du type figure 3 l'émission violette (effet primaire) peut être absorbée totalement par la pellicule teintée; dès lors, la seule émission observable est la fluorescence (effet secondaire). Donc, dans des cellules présentant des microbulles, l'effet primaire de décharge peut être masqué et ne servir qu'à exciter la fluorescence des composés à base d'acridine.

CRITÈRES D'ÉLECTROLUMINESCENCE DU SOLIDE. — Notre étude précédente, sans nier la réalité des phénomènes d'électroluminescence du solide, montre que, dans certains cas, il peut se produire ou un simple phénomène d'électroluminescence gazeuse excitant la luminescence du « phosphor » ou une superposition des deux phénomènes sans que l'effet de tension, de fréquence et l'étude spectrographique et oscillographique ne puissent permettre de les différencier.

Dans une réponse à Herwelly [31] qui mettait en doute le phénomène d'électroluminescence du solide, Destriau montre [32] que l'électroluminescence est bien un phénomène primaire, c'est-à-dire que la lumière est produite par l'excitation directe de la luminescence sous l'effet du champ électrique et non par l'excitation de la substance sous l'action des effluves formées dans les microbulles.

Parmi les raisons qu'il donne, deux d'entre elles ne nous paraissent pas suffisantes :

a) Dans l'étude spectrographique de deux types de cellules au sulfure de zinc au manganèse, l'une à pellicule d'air, l'autre à diélectrique solide, Destriau montre que la première cellule émet en plus de la luminescence des bandes caractéristiques du gaz, alors que la seconde n'émet que le spectre de luminescence

sans aucune bande d'étincelles. Il montrerait ainsi qu'aucune décharge gazeuse ne se produit dans la deuxième cellule. D'après notre étude précédente, ce critère ne serait pas suffisant. En effet, on peut concevoir que l'émission violette dans d'éventuelles bulles contenues dans le sulfure de zinc soit entièrement absorbée et ne serve qu'à exciter sa fluorescence.

b) Destriau montre que le décalage de l'onde de brillance sur l'onde de tension est plus grand dans le cas d'une cellule à air que dans celui d'une cellule à diélectrique solide. Nous avons observé que ce décalage varie avec la pression de l'air (*fig.* 8) et peut s'approcher de la valeur observée dans les cellules minérales. On ne peut donc considérer ce décalage comme un critère.

Pourtant nous relevons deux critères donnés également par Destriau qui semblent bien prouver l'existence du phénomène d'électroluminescence minérale :

a) Il existe des substances électroluminescentes qui ne présentent aucune fluorescence.

b) Des substances électroluminescentes réduites en poudre très fine et placées sous vide poussé s'illuminent. Dans ce cas, en effet, le phénomène de décharge gazeuse ne peut se produire au niveau des microbulles même si elles existent dans le « phosphor ». En effet, la décharge lumineuse est due à un phénomène d'excitation par chocs, phénomène qui ne se produit que si le libre parcours moyen de l'électron est très petit par rapport à l'épaisseur du gaz. Or, Destriau admet que les microbulles éventuelles ne peuvent être que de l'ordre de 1/10 de μ pour les poudres cristallines qu'il utilise. Ce sont des dimensions inférieures au libre parcours moyen. Il est donc impossible que le phénomène d'excitation par chocs se produise.

IV$_4$. Étude du courant dans les cellules électroluminescentes gazeuses. — Pour essayer de compléter les résultats propres aux cellules gazeuses, nous avons fait ici une analyse non plus de la brillance mais de l'intensité de courant. Nous étudions en particulier la variation de l'onde d'intensité en fonction de la tension, de la pression et de l'épaisseur du gaz soumis à la décharge. Nous comparons les résultats à ceux obtenus dans l'effet couronne en champ alternatif et nous essayons de montrer que des décharges du type Townsend ou du type « streamers » seraient susceptibles d'intervenir dans les cellules électroluminescentes à air.

1. Influence de la tension. — La cellule du type 2 d'épaisseur 80 μ contenant de l'azote sous pression optimale d'émission lumineuse est soumise à un champ alternatif de 100 Hz.

Les oscillogrammes des figures 14 et 15 correspondent respectivement aux tensions de 400 et de 1 000 V pour lesquelles la décharge luminescente a lieu. De D à B', le courant est représenté par une portion de sinusoïde déphasée de π/2 par rapport à la tension.

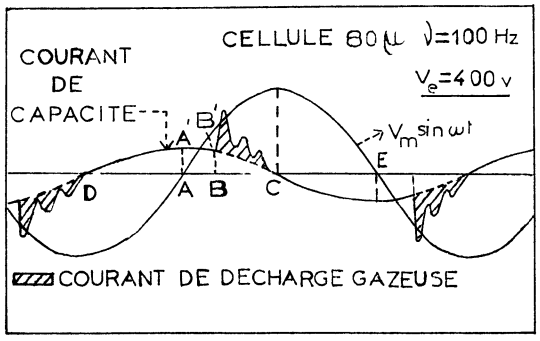

Fig. 14.

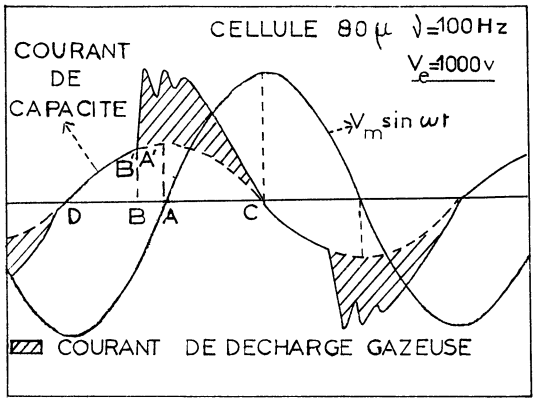

Fig. 15.

Nous l'appelons courant de capacité en l'absence de décharge gazeuse. A partir de B', le courant croît brutalement et continue par une onde oscillante amortie jusqu'en C. Ce courant que nous appelons courant de décharge gazeuse se superpose au courant sinusoïdal de capacité (en pointillé de B' à C).

Le point de démarrage B' et l'importance du courant de décharge dépendent de la tension appliquée. Lorsque celle-ci croît, il en est de même du courant de décharge et le point B' se déplace vers la gauche sur l'onde sinusoïdale de capacité. Par rapport au point A' correspondant au zéro de tension *A*, le point B' peut se trouver à droite (*fig.* 14), à gauche (*fig.* 15) ou en coïncidence.

2. Influence de l'épaisseur. — La figure 16 montre que pour une cellule de 40 μ le courant de décharge apparaît sur l'onde sinusoïdale d'intensité comme une légère perturbation beaucoup moins importante que dans une cellule de 80 μ.

Remarque importante. — L'onde sinusoïdale d'intensité d'une cellule minérale (type Destriau) ne montre aucune perturbation. Nous avons pensé que l'absence de cette dernière pouvait constituer un critère d'électroluminescence du solide. En fait, cette condition n'est pas suffisante. En effet, l'intensité de courant de décharge diminuant avec l'épaisseur de gaz, on peut

penser que dans des cellules à diélectrique solide contenant des microbulles, le courant de décharge ne peut être décelé sur l'onde d'intensité qui aura alors

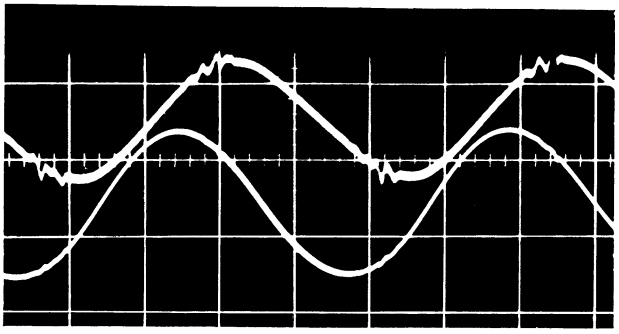

FIG. 16.

la forme d'une onde sinusoïdale sans perturbation comme dans le cas d'une cellule de Destriau.

Donc le fait qu'aucun courant de décharge ne se superpose au courant de capacité ne suffit pas à affirmer la réalité du phénomène d'électroluminescence du solide.

3. ONDE DE BRILLANCE ET ONDE D'INTENSITÉ DE COURANT. — La comparaison de ces ondes a été faite pour une cellule de 80 μ à la pression optimale d'émission lumineuse, soumise à une tension de 600 V et une fréquence de 100 Hz. La figure 17 montre que l'émission lumineuse croît brutalement (A') en même

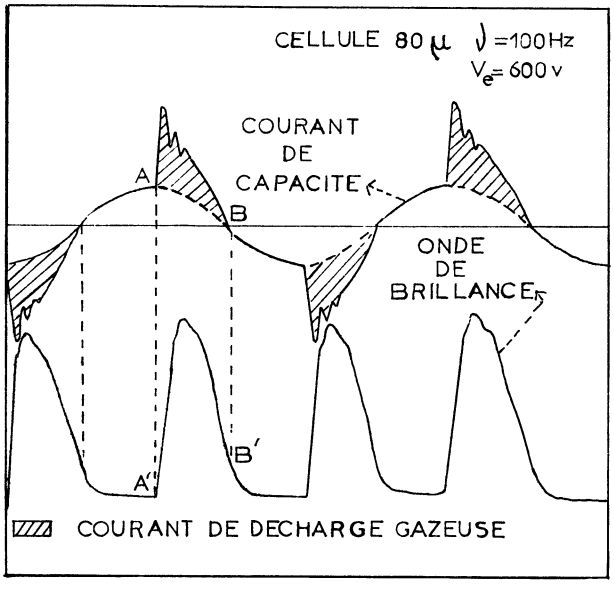

FIG. 17.

temps que le courant de décharge (A) dont les oscillations amorties se traduisent par une variation parallèle mais moins prononcée de l'onde de brillance.

Remarques. — *a)* Dans les cellules généralement étudiées d'épaisseur plus faible (20 à 40 μ), les petites variations observées au voisinage du maximum de l'onde de brillance ne sont pratiquement plus perceptibles.

b) L'expérience montre que l'onde de courant de décharge prend naissance et disparaît en même temps que l'onde de brillance quelle que soit la pression. Aussi faut-il s'attendre à ce que le déphasage onde de courant de décharge-onde de tension passe par un maximum pour la pression optimale correspondant au maximum de brillance (§ $IV_{2,1}$).

4. ANALOGIES ET DIFFÉRENCES ENTRE L'EFFET OBSERVÉ DANS LES CELLULES ÉLECTROLUMINESCENTES GAZEUSES ET L'EFFET COURONNE. — Il existe une ressemblance entre les oscillogrammes tension-intensité de courant (*fig.* 14 et 15) des cellules gazeuses et de ceux obtenus dans l'effet couronne en champ alternatif [33, *page* 271-3] (6).

Dans ce dernier type de décharge, l'onde de courant est formée, comme pour les cellules gazeuses, de deux composantes : l'une est le courant normal de capacité et l'autre le courant d'effet couronne formé d'harmoniques.

Cette analogie se poursuit également dans l'influence de la tension. Lorsque celle-ci augmente, le point de départ de l'effet couronne se déplace vers le zéro de tension appliquée.

L'effet de charges d'espace rapproche aussi les deux types de décharge. L'action des charges spatiales dans l'effet couronne en alternatif a été étudiée par Holm [34] qui propose un schéma simplifié des déplacements de charges qui pourrait être adapté au cas de nos cellules.

Un champ non négligeable dû à ces charges peut apparaître si la densité de courant est supérieure à 1 μA/m². Nos mesures de densité de courant donnant des valeurs de l'ordre de 100 μA/m², il faut tenir compte de ce champ de charges d'espace.

L'examen des figures 14 et 15 confirme l'existence de ce champ. En effet, on peut supposer que, pour une cellule donnée, soumise à une pression et une fréquence de courant constantes, la valeur du champ correspondant à l'allumage doit être constante. Si le seul champ existant était celui appliqué à la cellule, le champ correspondant au point d'allumage B' devrait être constant. Or, l'oscillogramme de la figure 18 (V = 600 V, ν = 100 Hz, distance interélectrode 80 μ) montre que ce point de départ de décharge gazeuse peut avoir lieu pour un champ appliqué nul. Dans ce cas, on peut dire que la décharge est provoquée par un champ de charges d'espace créées par la demi-alternance précédente.

(6) L'effet couronne est généralement observé dans le cas où le champ électrique appliqué entre les électrodes est fortement inhomogène : électrodes cylindriques parallèles ou coaxiales, électrodes sphériques ou pointues.

Dans l'effet couronne, le champ appliqué E étant non uniforme, le rapport E/p n'est plus constant pour une pression donnée p; la relation $\alpha/p = f(E/p)$ [5]

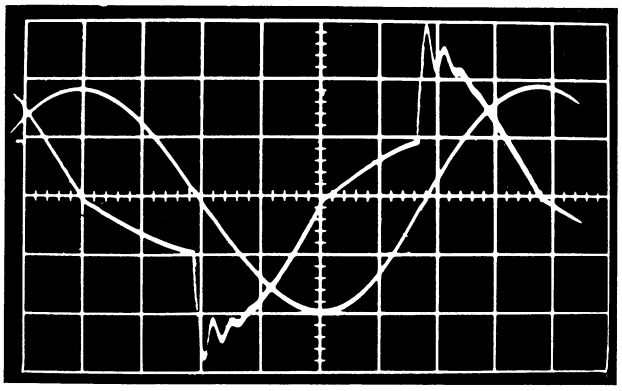

FIG. 18.

obtenue pour des champs uniformes ne s'applique plus. Dans nos cellules, la quantité E/p est sensiblement constante tant que E est faible, mais pour des valeurs élevées de E, le champ de charges d'espace n'est plus négligeable, α varie dans l'espace de la décharge et comme dans l'effet couronne E/p n'est plus constant.

Si ce qui précède a fait ressortir les analogies entre la décharge couronne et la décharge dans les cellules gazeuses, il est intéressant de noter ce qui les différencie.

Dans le cas des géométries bifilaires ou coaxiales, la décharge se limite à la région voisine des électrodes là où le champ est le plus intense. Autour des fils, on observe une gaine lumineuse cylindrique : d'où le nom d'effet couronne. Dans la partie de l'espace interélectrode où le champ est faible, aucune décharge ne se produit. Dans nos cellules où la distance interélectrode est faible, la décharge a lieu dans tout l'espace interélectrode.

Une autre différence entre la décharge couronne et la décharge dans nos cellules vient du fait que le premier effet se produit aussi bien en champ alternatif qu'en champ continu, alors que le deuxième n'a lieu qu'en champ variable. Dans l'effet couronne, le champ est d'une inhomogénéité extrême et l'ionisation est importante au voisinage des champs élevés; les charges qui se rapprochent du fil subissent l'action d'un champ de plus en plus intense : ce qui accroît leur pouvoir ionisant. De plus, la couche de gaz subissant l'effet d'un champ élevé est suffisante pour que les avalanches successives de plus en plus denses puissent entretenir la décharge. Dans nos cellules, le champ continu même en présence de charges d'espace n'a pas le caractère de forte inhomogénéité comme dans les types d'électrodes à effet couronne; le pouvoir ionisant ne subit pas de variation importante le long des lignes du champ; d'autre part, l'épaisseur de gaz étant faible, les charges sont rapidement attirées par les armatures avant de produire des avalanches assez denses pour l'entretien de la décharge; après capture des charges par les armatures, la décharge s'arrête (phénomène de polarisation). Pour provoquer une nouvelle décharge, il faut une inversion du champ qui a pour effet de remettre les charges en mouvement dans le gaz mais en sens inverse. Ainsi s'explique que le champ alternatif ou rectangulaire provoque l'électroluminescence de nos cellules.

5. MÉCANISME DE TOWNSEND ET MÉCANISME « STREAMERS ». — Les oscillogrammes des figures 14 et 15 ont été obtenus dans le cas de l'azote sous pression optimale d'émission lumineuse. La lumière émise dans ces conditions présente un aspect homogène (*fig.* 19, couronne intérieure).

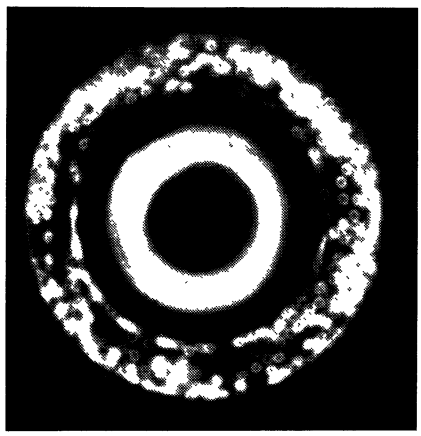

FIG. 19. — Photographie de la décharge dans l'air de la cellule figure 2 : Couronne intérieure : décharge diffuse de Townsend ($P = 80$ mm Hg) ; Couronne extérieure : décharge inhomogène type « streamers » ($P = 500$ mm Hg).

Le mécanisme qui intervient dans cette décharge semble être celui de Townsend (II_4). On observe dans le cas de l'air les mêmes oscillogrammes si l'on considère le premier maximum stable pour lequel l'émission est aussi homogène. Le deuxième maximum est

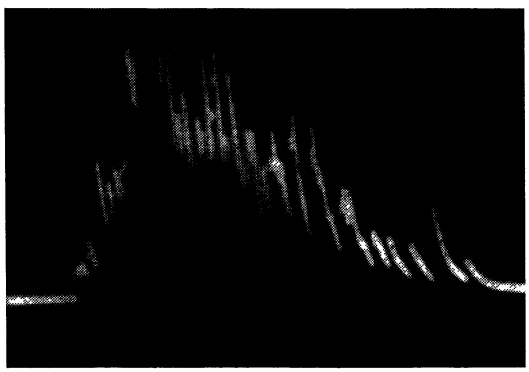

FIG. 20.

instable et se présente sous forme d'émissions ponctuelles (*fig.* 19, couronne extérieure) qui se traduisent à l'oscilloscope par des impulsions à front raide (*fig.* 20).

Nous pensons qu'il s'agit de « streamers » pour lesquels les conditions d'apparition semblent réunies : nécessité d'un mélange gazeux, sous épaisseur suffisante ([7]), champ et pression élevés.

Il existe une autre condition empirique de formation de « streamers » énoncée par Raether [24, *page* 131] :

$$(\alpha\, d)\ \text{crit} \simeq 20$$

α coefficient d'ionisation, d distance interélectrode. Vérifions si cette relation est approximativement vérifiée dans nos cellules à air.

L'importance des courants correspondant à ces deux maximums étant de même ordre de grandeur, nous admettons en première approximation que les relations ci-dessus [33, *page* 153] données pour l'air restent valables pour ces maximums :

$$E/\alpha = 66 \quad \text{et} \quad E/p = 365.$$

Pour $p = 500$ mm Hg (2^e maximum) et $d = 4 \times 10^{-3}$ cm, on trouve :

$$\alpha\, d \simeq 11$$

ordre de grandeur pas trop éloigné de 20, étant donné l'approximation faite. Le produit $\alpha\, d$ croissant fortement avec d, il est possible de se rapprocher de la valeur critique donnée par Raether.

Remarques. — *a)* Le critère de Raether est généralement vérifié dans les conditions usuelles suivantes : $d \simeq 1$ cm et $p \simeq 100$ mm Hg [24, *page* 131].

Les pressions utilisées dans nos cellules sont de cet ordre de grandeur, mais les distances interélectrodes sont nettement plus faibles (10^{-2} cm). Aussi peut-on se demander si le critère de Raether reste valable pour de si faibles dimensions.

b) Si on observe la figure 21, on voit que la courbe de brillance OCD (mécanisme de Townsend) continuerait à décroître régulièrement jusqu'en F (partie en tirets) si la deuxième partie DEF (mécanisme « streamers ») ne s'y ajoutait. On peut penser qu'il s'agit là d'une transition entre deux types de mécanismes. Raether [24, *page* 142] présente entre ces deux mécanismes un schéma de transition qui s'applique peut-être à nos cellules à air.

([7]) Le deuxième maximum disparaît pour une épaisseur d'air < à 20 μ.

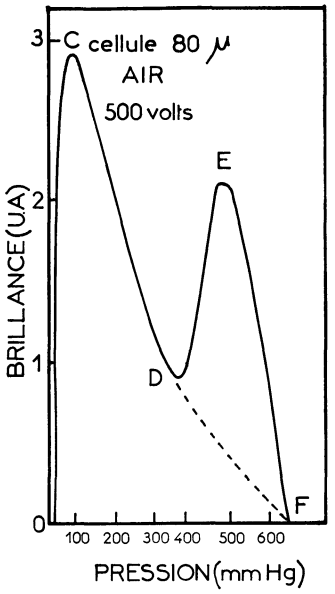

FIG. 21.

Conclusion. — L'étude de la brillance des cellules électroluminescentes gazeuses et de l'intensité de courant nous a permis :

a) De montrer que l'influence de la tension, de la fréquence, l'étude spectrale et oscillographique n'ont révélé aucune différence entre l'électroluminescence gazeuse et l'électroluminescence organique de l'orangé d'acridine.

b) De définir les critères vrais d'électroluminescence minérale.

c) De dégager les analogies et différences entre les phénomènes de courant observés dans les décharges de cellules gazeuses et ceux produits dans l'effet couronne.

d) De formuler l'hypothèse d'une transition du mécanisme de Townsend au mécanisme « streamers » lorsqu'on passe du premier maximum de brillance de l'air au second.

Remerciements. — Je tiens à témoigner ma profonde reconnaissance à M. le Professeur P. Pesteil qui a bien voulu me proposer le sujet de ce travail, m'accueillir dans son laboratoire et suivre mes travaux avec beaucoup d'intérêt.

J'exprime tous mes remerciements à M. le Professeur Papoular qui m'a donné de précieux conseils dans l'orientation de mes recherches.

BIBLIOGRAPHIE

[1] BERNANOSE (A.), COMTE (M.) et VOUAUX (P.), *J. Chim. Phys.*, 1953, **50**, 64.

[2] BERNANOSE (A.) et VOUAUX (P.), *J. Chim. Phys.*, 1953, **50**, 261.

[3] BERNANOSE (A.), *J. Chim. Phys.*, 1955, **52**, 396.

[4] BERNANOSE (A.), *J. Chim. Phys.*, 1955, **52**, 509.

[5] HARTMAN (W. A.) et ARMSTRONG (L.), *J. Appl. Physics*, 1967, **38**, 2393.

[6] LOZYKOWSKY (H.) et MECZYNSKA (H.), *Bull. Acad. Polon., Ser. Sci. Math. Astron. Phys.*, 1961, **9**, 235.

[7] DARVENIZA (M.), *Nature*, 1963, **200**, 558.
[8] JONES (E.) et ANGERER (L.), *Nature*, 1966, **210**, 1219.
[9] DESTRIAU (G.), *J. Chim. Phys.*, 1936, **33**, 587 ; *J. Chim. Phys.*, 1937, **34**, 117.
[10] IVEY (H. F.), *I.R.E. Trans. Electron. Devices*, U.S.A., 1959, **2**, 203 (720 références).
[11] TRIMBLE (P. K.), Electroluminescence, Selected Bibliography, Wright Air Development Center, I.M., 59-110.
[12] HENISCH (H. K.), Electroluminescence, Pergamon Press, 1962.
[13] IVEY (H. F.), Electroluminescence and related topics, Academic Press, London, 1963.
[14] DESTRIAU (G.), *Phil. Mag.*, 1947, **38**, 70.
[15] CURIE (D.), *J. Physique Rad.*, 1953, **14**, 516.
[16] NAMBA (S.), YOSHIZAWA (M.) et TAMURA (H.), *J. Appl. Phys. Jap.*, 1959, **28**, 439.
[17] GURNEE (E. F.), Physical Research Laboratory, The Dow Chemical Company Midland, Michigan, communication privée.
[18] POPE (M.), KALLMAN (H.) et MAGNANTE (P.), *J. Chem. Phys.*, 1963, **38**, 2042.
SANO (M.), POPE (M.) et KALLMAN (H.), *J. Chem. Phys.*, 1965, **43**, 2920.
[19] HOARAU (J.) et ABETINO (F.), *C. R. Acad. Sc.*, 1963, **257**, 646.
[20] HOARAU (J.), VENTRE (R.) et ABETINO (F.), *C. R. Acad. Sc.*, 1965, **261**, 1831 ; 1965, **261**, 1953.
[21] HOARAU (J.), *C. R. Acad. Sc.*, 1965, **261**, 2083 ; 1965, **261**, 2212 ; 1965, **261**, 2343.
[22] TOWNSEND (J. S.), Electrons in gases, Hutchinson, London, 1947.
[23] MEEK (J. M.) et CRAGGS (J. D.), Electrical breakdown of gases, Oxford, 1953.
[24] RAETHER (H.), Electron avalanches and breakdown in gases, London, 1964.
[25] LOEB (L. B.), Basic processes of gaseous electronics, California Press, Berkeley, 1955.
[26] LAPORTE (M.), Décharges électriques dans les gaz, A. Collin, Fr., 1948.
[27] BERNARD (R.), Thèse, Paris, 1939.
[28] DESTRIAU (G.), *J. Physique Rad.*, 1953, **14**, 307.
[29] MATTLER (J.), *J. Physique Rad.*, 1956, **17**, 725.
[30] BERNANOSE (A.), *Bull. Soc. Fr. Elect.*, 1962, **3**, 29.
[31] HERWELLY (A.), *Acta Physica Austriaca*, 1951, **5**, 30.
[32] DESTRIAU (G.), *J. Physique Rad.*, 1953, **14**, 307.
[33] COBINE (J. D.), Gaseous conductors, McGraw-Hill, New York, 1950.
[34] HOLM (R.), WISS, VEROFF, a.d. Siemens-Konzern, 1925, IV, **1**, 14.