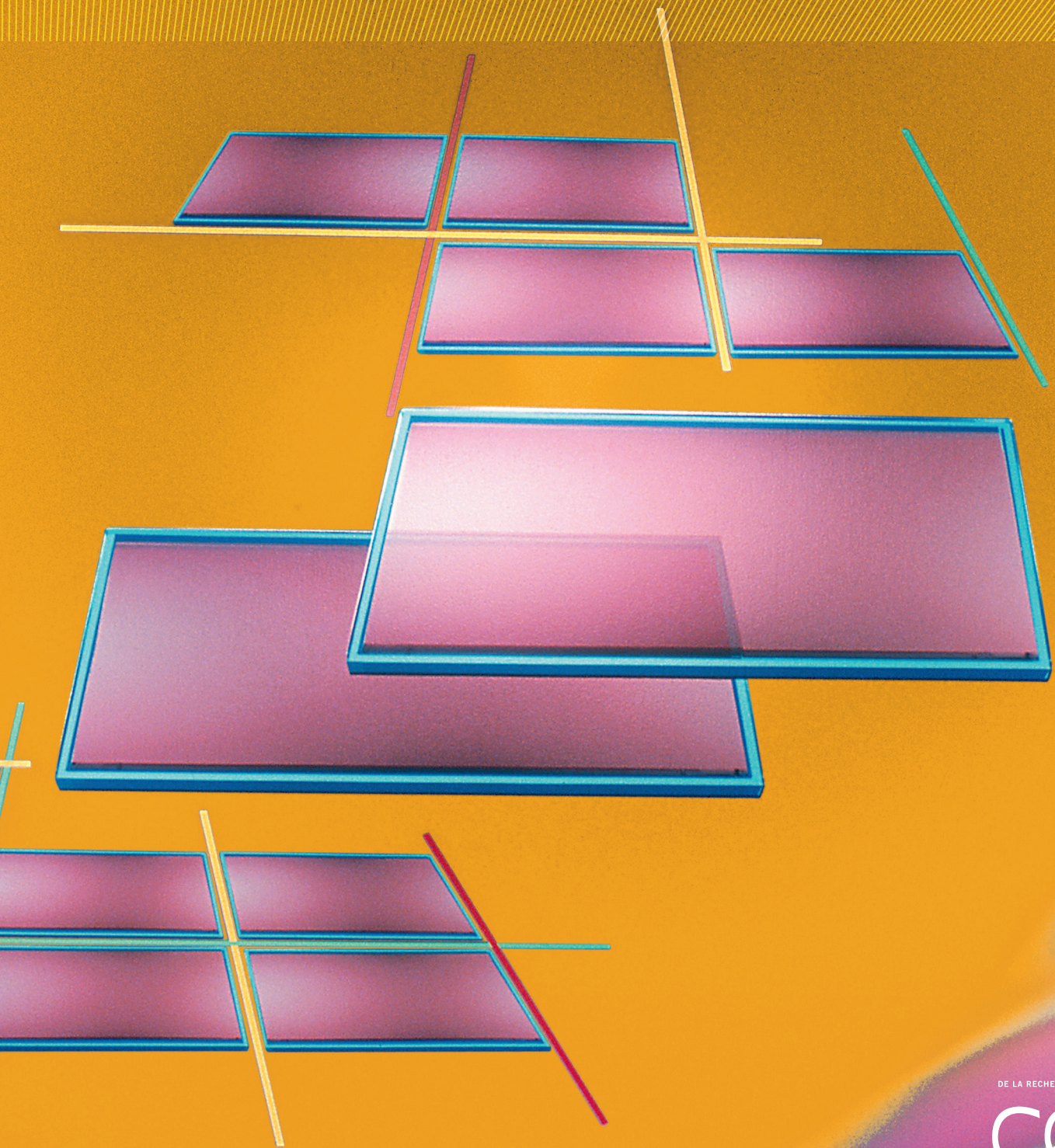
CHOCS

avancées 2011

Avancées scientifiques et techniques de la Direction des applications militaires



DE LA RECHERCHE À L'INDUSTRIE

cea

sommaire

2 **ÉDITORIAL**
T. MASSARD

ÉLECTROMAGNÉTISME

4 **Génération du chaos sur les récepteurs antennaires**
R. VÉZINET, F. CAUDRON, A. OUSLIMANI, A. KASBARI

6 **Effet des impulsions électriques sur le vivant**
R. VÉZINET, A. SILVE, L.M. MIR

INTERACTION LASER - MATIÈRE

8 **Traitement de signal linéaire pour conversion de fréquence**
S. VIDAL, J. LUCE, S. HOCQUET, D. PENNINCKX, C. GOUÉDARD

10 **De nouveaux verres pour la conversion de fréquence**
H. VIGOUROUX, B. LE GARREC, E. FARGIN, S. GOMEZ, V. RODRIGUEZ, F. ADAMIETZ, M. DUSSAUZE, S. LOTAREV, V. SIGAEV, E. KAMITSOS, G. MOUNTRICHAS

12 **Dynamique électronique induite par laser dans les (D)KDP**
G. DUCHATEAU, G. GEOFFROY, A. DYAN, H. PIOMBINI, G. GEOFFROY, S. GUIZARD

PHYSIQUE DES PLASMAS

14 **Conductivité thermique de l'hydrogène**
F. LAMBERT, V. RECOULES, A. DECOSTER, J. CLÉROUIN, M. P. DESJARLAIS

16 **Vers la fusion thermonucléaire à gain par confinement inertiel avec l'allumage par choc**
B. CANAUD, S. DEPIERREUX, S. LAFFITE, V. BRANDON, G. DEBRAS, C. GOYON, C. ROUSSEAUX, M. TEMPORAL, S. BATON, M. KOENIG, C. LABAUNE, X. RIBEYRE

19 **Analyse des spectres d'absorption du fer et du cuivre mesurés dans le domaine X auprès du laser LULI 2000**
P. ARNAULT, T. CAILLAUD, J. FARIAUT, F. GILLERON, J.-C. PAIN, Q. PORCHEROT, C. REVERDIN, V. SILVERT, B. VILLETTE, T. BLENSKI, G. LOISEL, M. POIRIER, F. THAIS, S. BASTIANI-CECCOTTI, S. TURCK-CHIÈZE, W. FÖLSNER, F. DE GAUFRIDY DE DORTAN

PHYSIQUE DE LA MATIÈRE CONDENSÉE

22 **Approche mésoscopique en détonique**
J.-B. MAILLET, E. BOURASSEAU, N. DESBIENS, G. VALLVERDU, G. STOLTZ

24 **Modélisation de la propagation de la détonation dans les explosifs condensés**
N. DESBIENS, V. DUBOIS, C. MATIGNON, R. SORIN, O. BOZIER

26 **Comprendre le diagramme de phase complexe de l'uranium : le rôle du couplage électron-phonon**
J. BOUCHET, S. RAYMOND, G. H. LANDER

PHYSIQUE NUCLÉAIRE

28 **Des multiprocesseurs pour des réponses multipolaires**
S. PÉRU, G. GOSSELIN, M. MARTINI, M. DUPUIS, S. HILAIRE

30 **Un nouveau type de cible active d'actinide pour les études de la fission et de réactions (n,xn)**
G. BÉLIER, J. AUPIAIS, C. VARIGNON, S. VAYRE

PHYSIQUE DE L'ATMOSPHÈRE

32 **À l'écoute de sources explosives accidentelles : observation et interprétation de signaux inattendus**
J. VERGOZ, A. LE PICHON, D. GREEN

INSTRUMENTATION & MÉTROLOGIE

34 **Analyses de particules par couplage ablation laser – ICP-MS**
F. POINTURIER, A.-C. POTTIN, A. HUBERT, C. PÉCHEYRAN

36 **Caractérisation des microballons par holographie**
C. HERMEREL, A. CHOUX, P. MÉRILLOT, L. JEANNOT, E. BUSVELLE, J.-B. VIOIX

SCIENCE DES MATÉRIAUX

38 **Analyse 3D d'électrodes SOFC par tomographie FIB**
E. BRUNETON, N. VIVET

40 **Modélisation de la nucléation des bulles d'hélium 3 dans un tritiure métallique à l'aide d'un automate cellulaire**
M. SEGARD, A. FABRE, S. THIÉBAUT, F. MONTHEILLET

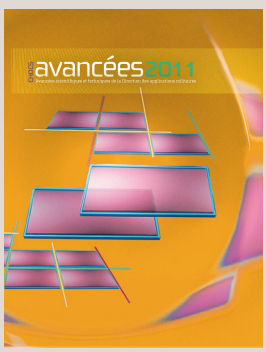
CALCUL NUMÉRIQUE

42 **Hiérarchie des données en parallélisme hybride**
P. CARRIBAULT, M. PÉRACHE, H. JOURDREN

CHIMIE

44 **Prédiction de réponses de capteurs chimiques**
P. PALMAS, J. KLINGENFUS, D. MATHIEU, P. MONTMEAT, L. HAIRAULT, C. METHIVIER, C. M. PRADIER

46 **PRIX ET DISTINCTIONS, LIVRES PARUS, SOUTENANCES HDR**



Commissariat à l'énergie atomique et aux énergies alternatives
Chocs Avancées 2011, Avancées scientifiques et techniques de la Direction des applications militaires.
Image de couverture : vue artistique représentant des plaques de verre laser dopé au néodyme équipant la Ligne d'intégration laser (LIL) et le futur Laser Mégajoule (LMJ) au centre du CEA / CESTA en Gironde. © D. Sarraute/CEA
Directeur de la publication : Thierry MASSARD. **Coordinateur scientifique :** Christophe LELOUP. **Comité scientifique :** Philippe BELLEVILLE, Daniel BOUCHE, Pierre BRUGUIERE, Jacques CAGNOUX, Gilles DAMAMME, Philippe DUVIGNAC, Francis HARDOUIN, Christophe LELOUP, Jean-Pierre LEYRAT, Paul LOUBEYRE, Stéphane LOUBIÈRE, Christophe MOULIN, Bruno SCHEURER, Rémi SENTIS, Philippe SIMONETTI, Christophe THIÉBAUT.
Rédacteur en chef : Michel BOIVINEAU.
Création et réalisation : EFIL / www.efil.fr. **Impression :** Gibert & Clarey, Chambray-lès-Tours. **Secrétariat, diffusion et abonnement :** Régis VIZET.

Chocs Avancées
CEA - DAM
Institut supérieur des études nucléaires de défense (ISENDé)
Bruyères-le-Châtel, F-91297 Arpajon cedex
Tél : 33 (0)1 69 26 76 98 - Fax : 33 (0)1 69 26 70 80
E-mail : chocs@cea.fr

Brochure imprimée sur papier écogéré
ISSN 1961-7399

éditorial

Par Thierry Massard
Directeur scientifique de la direction des applications militaires du CEA

Les publications scientifiques et techniques à la DAM

Forte de quelques 400 publications en 2011, la DAM contribue de manière significative au rayonnement scientifique et technique du CEA. Compte tenu de ses missions spécifiques, on peut s'étonner d'un tel chiffre et d'une telle volonté d'afficher ses domaines d'excellence. On le sait bien, la DAM a cette particularité, au sein du CEA, de faire à la fois une recherche très amont pour ses programmes de défense et de décliner ces travaux jusqu'à la réalisation et le maintien, pendant tout leur cycle de vie, de ses produits finaux, intégrés dans des systèmes d'armes de dissuasion nucléaire ou dans des bâtiments de la Marine à propulsion nucléaire.

Au cours des années passées, la DAM n'a pas cessé de défricher des domaines nouveaux de la physique qui lui ont permis de mettre à la disposition de la Défense des systèmes adaptés aux exigences toujours accrues des militaires. L'arrêt des essais nucléaires a souligné encore plus que par le passé l'importance que revêt une recherche de base de qualité pour aborder les grands défis de la simulation. Quelques exemples s'imposent à nous : en physique nucléaire, les travaux de nos chercheurs sur les interactions au sein des noyaux ainsi que sur les produits de fission ont donné lieu à des avancées que l'on ne trouve nulle part ailleurs. Dans le domaine de la physique des matériaux, la compréhension des propriétés magnétiques et diélectriques des céramiques complexes a donné lieu à des applications nouvelles pour la pénétration et le durcissement de nos systèmes. Les travaux théoriques associés ont été salués par l'ensemble de la communauté scientifique. Autre exemple : les avancées technologiques dans le domaine des lasers PHEBUS, LIL et PETAL, et dans des expérimentations associées, ont permis à la DAM de porter un programme ambitieux de simulation pour la garantie et la fiabilité de nos armes. Ainsi, la France est le premier pays à avoir garanti une arme nucléaire - la tête nucléaire aéroportée (TNA) - par la simulation sans recourir à des essais nucléaires. Cet effort se poursuivra dans les années à venir avec la mise en service du Laser Mégajoule au CEA-CESTA près de Bordeaux. Une R & D comparable a été faite dans le domaine des grands calculateurs avec le succès que l'on sait puisque le Très grand centre de calcul (TGCC) de Bruyères-le-Châtel bénéficie directement des retombées industrielles de ces recherches avec l'ordinateur CURIE, de classe pétaflopique, dédié à la communauté des chercheurs européens.

Séance d'ouverture en septembre 2011 à Bordeaux de la conférence IFSA sur la fusion par confinement inertiel. Avec près de 40 communications, le CEA-DAM affirme sa position de leader européen dans ce domaine. © P. LABEGUERIE

Tous ces exemples montrent à l'évidence qu'une dissuasion de qualité va de pair avec une recherche scientifique et technique de très haut niveau. La DAM a besoin de cet effort de recherche afin d'asseoir son socle de connaissances de base, et de transmettre aux générations suivantes d'ingénieurs et de chercheurs un savoir unique en France et indispensable pour garantir la pérennité de la dissuasion. Elle le fait grâce à des équipes solides mais nécessairement limitées en nombre. Elle le fait donc également grâce à des collaborations choisies de manière stratégique afin de mener, en partenariat avec des équipes d'excellence de la recherche française, nos recherches sur des sujets cruciaux pour l'avenir de la dissuasion française.

De ce point de vue l'année 2011 n'a pas failli à la tradition. Ce numéro d'*Avancées 2011* vous propose une sélection de publications faites par nos chercheurs au cours de l'année écoulée. Les thématiques sont vastes allant de la chimie à la physique nucléaire en passant par les effets des ondes électromagnétiques. Elles reflètent en tout cas l'esprit de la DAM tourné résolument, avec ses partenaires académiques, vers des programmes ambitieux dont la France a besoin afin de maintenir une force de dissuasion disponible, sûre et fiable.

Génération du chaos sur les récepteurs antennaires

Sous certaines conditions d'agression, les circuits électroniques comportant des composants non linéaires peuvent basculer dans un comportement chaotique. Pour des applications de défense, de type brouillage offensif, celui-ci peut être recherché afin de provoquer le dysfonctionnement intentionnel des systèmes. Dans le cadre de cette étude, nous nous sommes intéressés au cas particulier d'un étage d'entrée de récepteur de communications muni d'un circuit limiteur à diodes. Nous avons déterminé les paramètres de l'agression électromagnétique capable de provoquer l'apparition de signaux chaotiques lors de l'illumination de l'antenne. Ce phénomène a été analysé, modélisé et vérifié expérimentalement.

R. Vézinet CEA - Gramat
F. Caudron • A. Ouslimani • A. Kasbari École nationale supérieure de l'électronique et de ses applications (ENSEA), ECS-Lab, Cergy

Dans le cadre des études conduites au CEA – Gramat sur la vulnérabilité des systèmes aux agressions électromagnétiques intentionnelles, nous nous sommes intéressés à la génération volontaire d'un comportement chaotique dans les circuits électroniques. En effet, celui-ci est susceptible de générer des dysfonctionnements importants des équipements, ce qui pourrait permettre d'obtenir le brouillage, voire la destruction des électroniques des systèmes d'armes à des niveaux de champ électromagnétique relativement faibles.

L'étude présentée dans cet article, conduite en association avec l'ENSEA, traite plus spécifiquement de la problématique des comportements chaotiques pouvant être provoqués au sein des circuits électroniques de l'étage d'entrée d'un récepteur antennaire.

Les récepteurs antennaires utilisent des circuits électroniques sensibles comme des amplificateurs faible bruit (LNA) ou des détecteurs. Compte tenu de leur sensibilité, ils sont souvent protégés par des circuits non linéaires (diodes) ou des limiteurs, installés entre l'antenne réceptrice et l'étage de réception. Un tel circuit, excité par un simple signal sinusoïdal, peut faire l'objet de comportements complexes comme le doublement de la période ou le chaos.

Pour cette étude, nous avons pris comme modèle d'expérimentation une antenne « patch » WiFi – 2,45 GHz, associée à un limiteur à diode PIN BAP64-02.

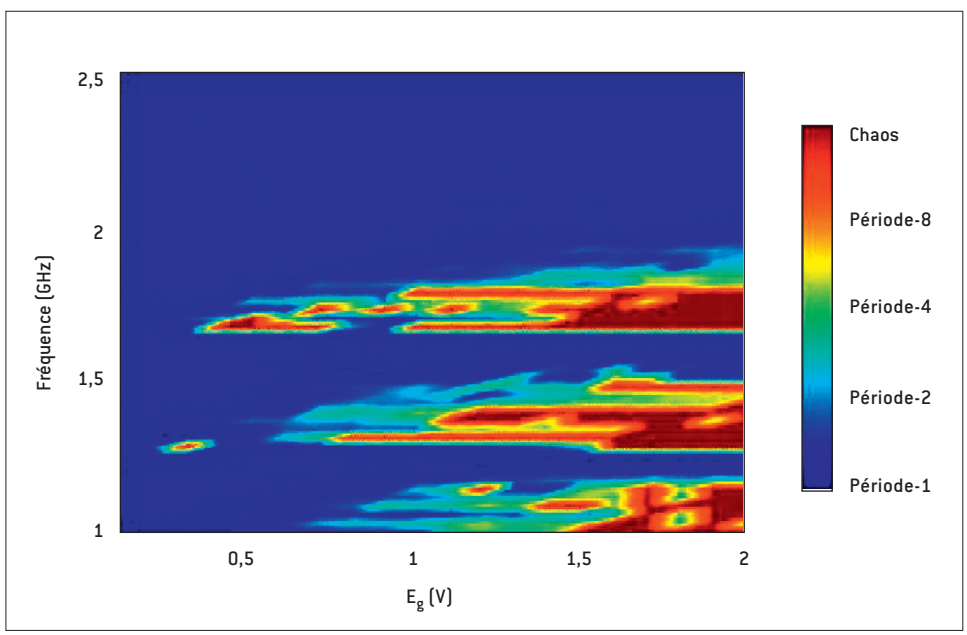


Figure 1. Diagramme de bifurcation théorique pour une antenne patch WiFi fournissant le nombre de périodes en fonction de la fréquence et de la tension du signal excitateur.

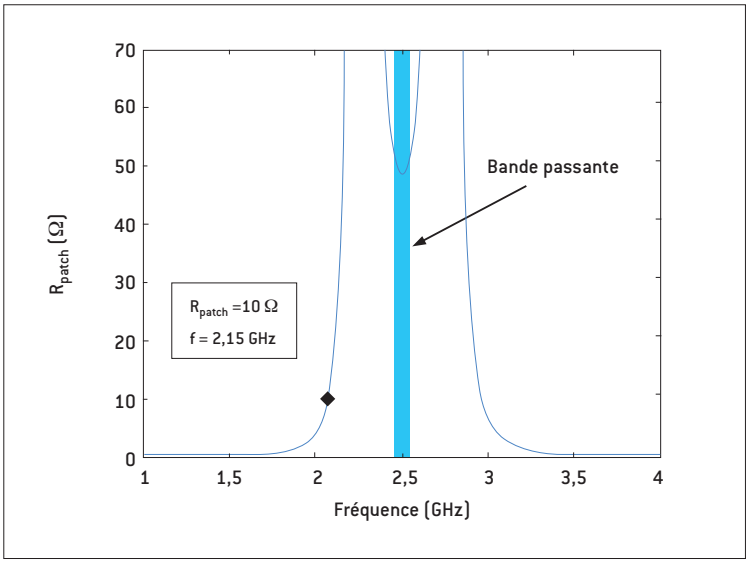


Figure 2.
Partie réelle de l'impédance de l'antenne WiFi en fonction de la fréquence, montrant sa bande passante et le point hors bande (à 2,15 GHz) utilisé.

Dans un premier temps, les conditions d'apparition du chaos ont été analysées par simulation numérique. Les modèles analytiques des circuits simples de type RLD (Résistance-Ligne-Diode) ont été étendus pour prendre en compte l'impédance de sortie de l'antenne sur toute la bande d'intérêt de l'étude. Nous avons proposé une équation différentielle non linéaire à retards décrivant le comportement d'un tel dispositif. Les phénomènes chaotiques peuvent alors être analysés à partir de diagrammes dits « de bifurcations » (**figure 1**).

Ce diagramme montre que, par doublements de période successifs, ces bifurcations vont se rapprocher de plus en plus pour aboutir à une zone d'accumulation; le signal possède alors une infinité de périodes : c'est le comportement chaotique.

Nous avons montré que ce phénomène se produit dans les conditions suivantes :

> L'antenne doit présenter une impédance suffisamment faible, typiquement inférieure à 5 ou 10 Ω. Cette désadaptation, combinée à la rupture d'impédance liée aux non-linéarités de la diode, provoquent des réflexions multiples apériodiques, autrement dit le chaos;

> La faible impédance de l'antenne est obtenue en l'agressant en dehors de sa bande de fonctionnement [1];

> La tension délivrée par l'antenne doit dépasser un certain seuil (2 Volts dans cet exemple). Il faut donc que le gain de l'antenne, hors de sa bande fonctionnement, soit suffisant pour générer un signal.

Dans le cas de l'antenne "patch" WiFi étudiée ici (**figure 2**), à la fréquence limite de 2,15 GHz, elle présente un gain de – 15 dB par rapport à son gain maximal, ce qui conduit à une tension délivrée de 2 V pour un niveau minimal d'agression du champ électromagnétique externe de 530 V/m.

Dans un deuxième temps, des expérimentations en injection et en illumination, menées au laboratoire ECS-Lab à l'ENSEA et au CEA – Gramat, avec différentes antennes, ont confirmé ces prévisions théoriques.

Conclusion

Ces nouveaux résultats montrent que, sous certaines conditions, il est possible de provoquer un comportement chaotique dans un circuit d'entrée antennaire « front-end », pour des niveaux de champs électromagnétiques relativement faibles. Par la suite, cette étude devrait être généralisée à d'autres types de circuits et de systèmes mettant en oeuvre des topologies différentes (cartes numériques ou analogiques).

D'autres aspects liés au chaos ont été explorés et vont être poursuivis. Il s'agit notamment de l'étude d'oscillateurs chaotiques d'ordres élevés et de fortes puissances destinés à illuminer des cibles pour lesquelles les fréquences vulnérantes sont étendues sur un large spectre.

RÉFÉRENCES

[1] F. CAUDRON, A. OUSLIMANI, R. VÉZINET, A. KASBARI, "Chaotic behavior in receiver front-end limiters", *Prog. In Electromagn. Res. [PIER] Letters*, **23**, p. 19-28 (2011).

Effet des impulsions électriques sur le vivant

Les études portant sur les effets des impulsions électriques sur le vivant connaissent aujourd'hui un regain d'intérêt car elles laissent entrevoir de nouvelles potentialités pour la manipulation des objets biologiques, notamment pour les applications au traitement du cancer. Des travaux récents conduits sur des impulsions très brèves, dites "nano-impulsions", ont permis une meilleure compréhension des mécanismes d'interactions avec les cellules et ont conduit à l'obtention de nouveaux résultats sur la valeur des paramètres déclenchant le phénomène d'électroporation. Cet aspect du bio-électromagnétisme intéresse corrélativement la Défense, en terme de seuils d'innocuité sur les personnels, du fait de l'émergence de systèmes d'armes de type radar rayonnant des ondes électromagnétiques en très haute fréquence.

R. Vézinet CEA - Gramat
A. Silve • L.M. Mir CNRS, Institut Gustave Roussy, UMR 8203, Villejuif

L'application d'impulsions électriques de quelques microsecondes ou quelques millisecondes sur des cellules biologiques peut provoquer la perméabilisation (ou électroporation) de leur membrane externe (**figure 1**). Ces phénomènes sont à la base d'applications médicales telles que l'électrochimiothérapie (combinaison d'impulsions électriques et de chimiothérapie), pratiquée dans une centaine de centres de traitement du cancer en Europe, ou l'électrotransfert de gènes qui en est encore au stade des essais cliniques.

Des impulsions électriques plus brèves (nanosecondes) font l'objet d'un intérêt croissant dans le domaine médical car elles remettent en cause les seuils d'apparition du phénomène d'électroporation.

Pour la Défense, de nouveaux concepts d'Applications électromagnétiques de défense (AEMD), qui mettent en oeuvre des systèmes ULB (Ultra large bande), font appel à des impulsions parfois très brèves. Pour garantir aux utilisateurs l'innocuité de ces systèmes, il est nécessaire d'en déterminer les seuils de nocivité; c'est à ce titre que le CEA – Gramat s'intéresse à ce sujet, en collaboration avec l'UMR 8203 à l'Institut Gustave Roussy.

Dispositifs expérimentaux

La plupart des expériences *in vitro* sont conduites sur des cellules biologiques en suspension dans des cuvettes; celles-ci assurent une répartition homogène du champ électrique appliqué entre deux électrodes planes. À très haute fréquence, la capa-

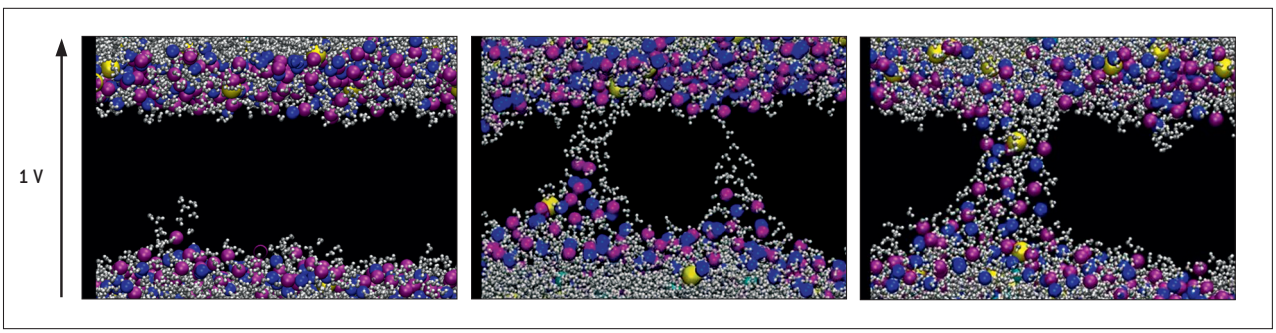


Figure 1. Simulation en dynamique moléculaire d'une membrane plane de phospholipides (zone noire) soumise à une différence de potentiel de 1 V. Mise en évidence de l'apparition de colonnes de molécules d'eau (en blanc) dans la membrane. *Les atomes de phosphate et d'azote des têtes polaires des lipides sont représentés respectivement en rose et bleu. Les ions de potassium de la solution sont représentés en jaune. De gauche à droite, séquence d'évènements lors de l'électroporation.*
(Crédit : M. Tarek – CNRS / Université de Lorraine, Nancy).

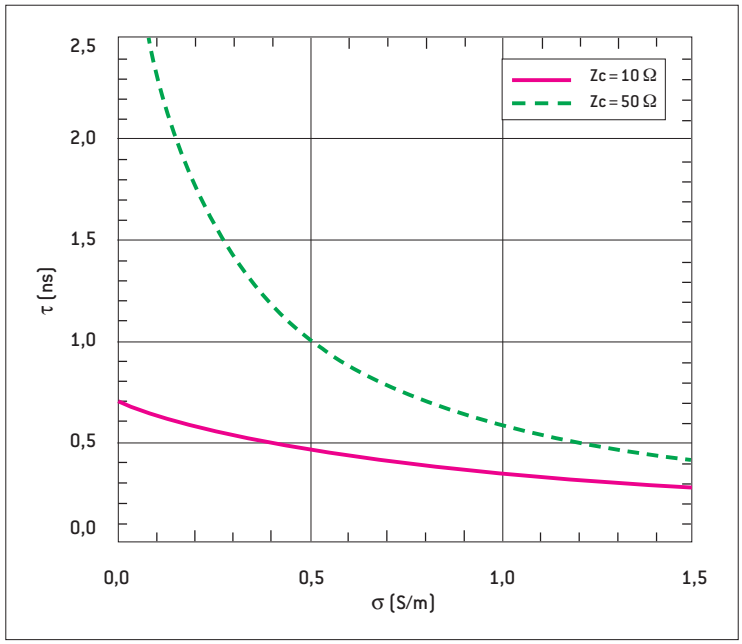


Figure 2.
Temps de montée fonction de la conductivité du milieu, pour 2 impédances de générateurs.

cité de ce banc de test à transmettre ces impulsions ultrarapides au sein même de la cuvette dépend intrinsèquement de la conductivité et de la permittivité du milieu en suspension, de la géométrie de l'éprouvette et de l'impédance interne de l'injecteur. La **figure 2** illustre ce phénomène dans le cas d'une éprouvette $S = 1$ cm², $d = 1$ mm.

Dans le cadre de cette étude, il a été nécessaire de développer des dispositifs expérimentaux et une métrologie spécifique associée, pour assurer le transfert des fronts de montée ultrarapides des champs électriques à appliquer.

Ainsi, l'implantation de capteurs de champs électriques et magnétiques miniatures de type "Bdot" et "Ddot" [1] a permis le contrôle systématique des grandeurs électriques appliquées au plus près du milieu biologique; ce sont ces paramètres clés qui sont le plus souvent mis en doute dans ce type d'expérimentation. Dans ces conditions, les temps de montée effectivement mesurés avoisinaient la nanoseconde [2] pour les cuvettes standard.

Résultats en terme d'électroporation

Les expériences conduites ont révélé que, contrairement à certaines assertions, les effets biologiques ne sont pas exclusivement dépendant de l'amplitude du champ électrique auquel les cellules sont exposées. En effet, nous avons montré que les seuils d'apparition de la perméabilisation membranaire peuvent être significativement abaissés en fonction de la durée d'impulsion, du nombre cumulé d'impulsions, de leur fréquence de répétition, et de la conductivité des milieux biologiques. Ainsi, à titre d'exemple, il faut quelques MV/m avec une seule impulsion de 10 ns ou quelques centaines de kV/m pour des impulsions de 100 microsecondes pour observer le même effet d'électroporation réversible.

Par ailleurs, et contrairement à certaines publications suggérant que les "nano-impulsions" ne peuvent créer que des pores de taille inférieure ou égale à 1 nm, nous avons montré que des molécules de plus grande taille, telle que la bléomycine, pouvaient aussi être internalisées avec ce type d'impulsion [3].

Pour les applications Défense, qui mettent en oeuvre des niveaux de champs généralement plus faibles, la détermination des seuils d'exposition nécessitera une étude plus paramétrique, prenant en compte les formes d'ondes les plus pertinentes au niveau du champ de bataille. Il faudra aussi tenir compte des phénomènes de pénétration dans les tissus humains (et de l'atténuation qui peut en résulter) des champs rayonnés par les systèmes antennaires.

RÉFÉRENCES

[1] **A. SILVE, R. VEZINET, L. M. MIR,** "Implementation of a broad band, high level electric field sensor in biological exposure device", *Proc. Power Modulator and High Voltage Conference (IPMHVC), 23-27 May 2010, 2010 IEEE International*, p. 711-714 (2010).

[2] **A. SILVE, R. VEZINET, L. M. MIR,** "Nanosecond duration electric pulses delivery in vitro and in vivo: experimental considerations", *IEEE Transactions on Instrumentation and Measurement*, sous presse.

[3] **A. SILVE, I. LERAY, L. M. MIR,** "Demonstration of cell membrane permeabilization to medium-sized molecules caused by a single 10 ns electric pulse", *Bioelectrochemistry* (2011) doi.org/10.1016/j.bioelechem.2011.10.002.

Traitement de signal linéaire pour conversion de fréquence

Comme pour de nombreuses applications, le Laser MégaJoule (LMJ) nécessite l'utilisation de la lumière ultraviolette. Cependant,on ne sait amplifier de manière cohérente et efficace que de la lumière infrarouge. Il convient donc de changer de « couleur » après amplification. On parle alors de conversion de fréquence (ou de longueur d'onde). Malheureusement, tout système de conversion de fréquence engendre des distorsions de l'impulsion laser par un filtrage non linéaire du spectre. Pour le LMJ, ces distorsions participent à l'endommagement des optiques et sont néfastes pour l'interaction avec la cible : elles doivent donc être limitées au mieux. Pour cela, nous avons proposé une solution innovante qui consiste à utiliser de simples fonctions de transfert linéaires insérées en début de chaîne avant toute amplification. L'ensemble de ces résultats permettra d'optimiser de manière significative les performances du Laser MégaJoule.

S. Vidal • J. Luce • S. Hocquet • D. Penninckx CEA-Cesta
C. Gouédard CEA-DAM Île-de-France

La conversion de fréquence dans le domaine optique n'a été rendue possible que suite à l'invention du laser au début des années 1960 qui permet d'atteindre des intensités élevées. Ce processus non linéaire repose sur le fait que lorsque la matière est soumise à un rayonnement électromagnétique sinusoïdal intense, elle le réémet mais légèrement distordu : des fréquences harmoniques du rayonnement incident sont créées. Il est alors possible de favoriser cette production de fréquences harmoniques et ainsi de faire, par exemple, de la sommation, de la soustraction ou du doublement de fréquences optiques. Pour cela, il faut respecter deux conditions : la conservation de l'énergie et celle de la quantité de mouvement des photons. La conservation de l'énergie fixe les fréquences mises en jeu (*i.e.* les longueurs d'onde) et celle de la quantité de mouvement nécessite d'utiliser des matériaux dans des conditions particulières, par exemple des cristaux taillés suivant un angle précis qui dépend des fréquences concernées. Dans le cas du LMJ, l'impulsion infrarouge est en partie doublée en fréquence (couleur verte) avec un cristal de KDP. Le reste de l'impulsion non doublée est sommé dans un cristal de DKDP avec l'impulsion doublée pour générer une impulsion à la fréquence triple, dans l'ultraviolet.

Malheureusement, la conversion de fréquence n'est parfaitement efficace que pour une fréquence particulière. Le rendement de conversion dépend donc de la fréquence, ce qui définit « l'acceptance spectrale ». Tant que l'impulsion à convertir possède un spectre étroit, on peut considérer la conversion de fréquence comme idéale. La forme des impulsions du LMJ ne les prédispose pas à avoir un spectre large, mais des contraintes de propagation rendent indispensable un élargissement important du spectre par une modulation de phase. Si le spectre n'est pas parfaitement conservé lors de la propagation, cette modulation de phase se transforme alors en une modulation d'intensité qui déforme l'impulsion. Ces déformations, lorsqu'elles sont importantes, peuvent entraîner un endommagement accéléré des optiques et sont néfastes pour l'interaction avec la matière. Il convient donc de réduire au mieux ces distorsions. Lorsque les distorsions sont linéaires, il est facile de les pré- ou post-compenser en ajoutant un filtre linéaire inverse. Si les distorsions sont non linéaires, comme dans le cas de la conversion de fréquence, ce problème de traitement de signal est beaucoup plus complexe.

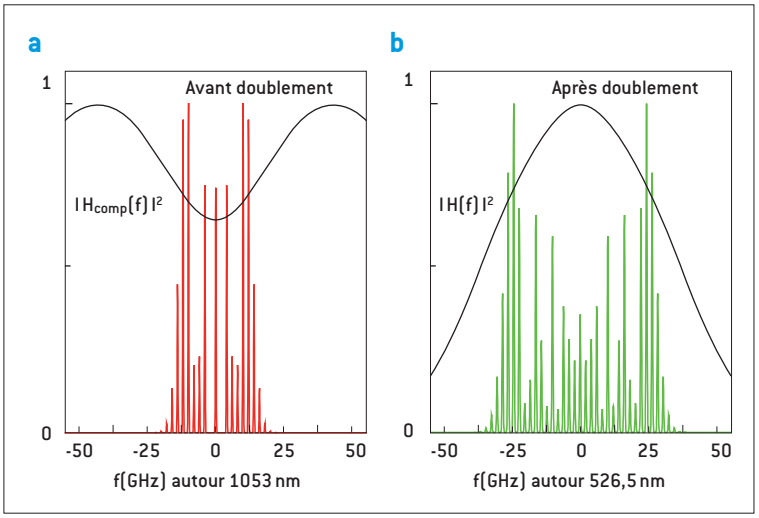


Figure 1. Spectre typique d'une impulsion modulée en phase avant (**a**) et après (**b**) doublement de fréquence. La courbe $|H(f)|^2$ représente l'acceptance spectrale de la conversion de fréquence pour une intensité donnée. La courbe $|H_{comp}(f)|^2$ est la fonction de transfert linéaire utilisée lors de la première expérience [4].

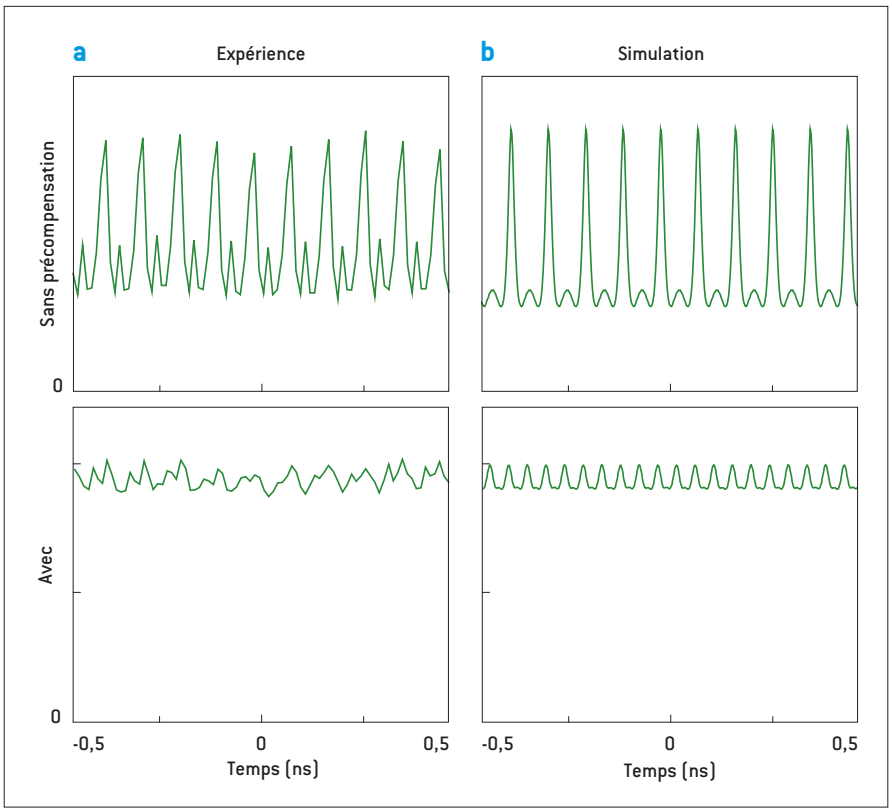


Figure 2. Résultats de la deuxième expérience **[5]**. Intensité de l'impulsion doublée en fréquence en fonction du temps. (**a**) : résultats expérimentaux sans (haut) et avec (bas) précompensation ; (**b**) : simulation des expériences. Idéalement, on recherche un signal constant en intensité.

Il est possible de montrer que, pour une intensité donnée, la conversion de fréquence d'un signal à spectre large peut être vue comme une conversion de fréquence idéale suivie d'un filtrage linéaire **[1]**. Il est donc théoriquement possible de post-compenser ce filtrage linéairement. Mais, en pratique, en aval de la conversion de fréquence, les intensités sont telles et l'énergie si précieuse que cette technique est inenvisageable : tout traitement de signal doit se faire en amont de la conversion de fréquence, rendant le problème fortement non linéaire. Nous avons cependant eu l'intuition qu'il était possible de trouver un simple filtre linéaire réduisant fortement les distorsions (**figure 1**). Des simulations numériques, dont nous avons publié les résultats **[2]**, nous ont convaincus de l'intérêt de cette technique,un brevet ayant été déposé en 2008 **[3]**.

Ces deux dernières années, nous avons mis en œuvre ce dispositif en laboratoire **[4,5]**. Les résultats sont à la hauteur de nos espérances. Pour simplifier, l'expérience est réalisée en doublement de fréquence d'une impulsion et non en triplement de fréquence. Dans une première expérience **[4]**, nous avons précompensé les effets de l'acceptance spectrale dans le cas où l'impulsion est quasiment complètement convertie en fréquence comme c'est le cas pour le LMJ. On parle alors de saturation. Nous avons montré que même s'il fallait optimiser le filtre linéaire de précompensation pour l'intensité considérée, le même filtre réduisait de manière significative les distorsions sur un domaine d'intensité très important. Le filtre de précompensation est un simple « interféromètre à deux ondes » réalisé avec des fibres optiques. Lors d'une deuxième expérience **[5]**, nous avons introduit des composants optiques supplémentaires, appelés réseaux diffractifs, qui ajoutent un filtrage en phase à l'acceptance spectrale en amplitude. C'est aussi le cas pour le LMJ. Le filtre de précompensation est alors légèrement plus complexe. Les résultats de précompensation sont présentés sur la **figure 2**. Le parfait accord entre résultats expérimentaux et modélisations nous assure de l'extrapolation au cas du LMJ.

La suite de ces travaux concerne maintenant l'étude des marges de dimensionnement et l'application d'une telle technique à des impulsions non modulées en phase mais plus courtes pour des lasers de radiographie.

RÉFÉRENCES

[1] S. HOCQUET, D. PENNINCKX, E. BORDENAVE, C. GOUÉDARD, Y. JAOUËN, "FM-to-AM conversion in highpower lasers", *Appl. Opt.*, **47**, p. 3338-3349 (2008).

[2] S. HOCQUET, G. LACROIX AND D. PENNINCKX, "Compensation of frequency modulation to amplitude modulation conversion in frequency conversion systems", *Appl. Opt.*, **48**, p. 2515-2521 (2009).

[3] S. HOCQUET, D. PENNINCKX, C. GOUEDARD, « Dispositif de réduction des distorsions temporelles induites dans des impulsions lumineuses par un système convertisseur de fréquence optique non linéaire », brevet n° FR 08-58954 (2008).

[4] S. VIDAL, J. LUCE, D. PENNINCKX, "Experimental demonstration of linear precompensation of a non-linear transfer function due to second-harmonic generation", *Optics Letters*, **36**(1), p. 88-90 (2011).

[5] S. VIDAL, J. LUCE, D. PENNINCKX, "Compensation of phase-to-amplitude modulation conversion in a complete frequency conversion system with an all-fiber system", *Optics Letters*, **36**(17), p. 3494-3496 (2011).

De nouveaux verres pour la conversion de fréquence

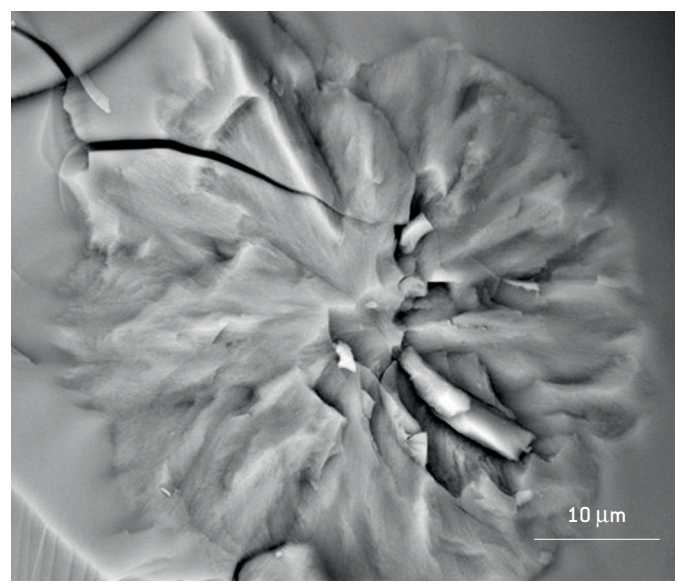
Nous cherchons à fabriquer des convertisseurs de fréquence en utilisant des verres comme matrice de base. Nous avons travaillé sur Li_2O-Nb_2O_5–SiO_2 (LNS) et montrons qu'un effet thermique (ou poling) permet de générer une susceptibilité non linéaire d'ordre 2 permanente dans le volume. Nos mesures montrent que cette susceptibilité est cinq fois plus grande que dans le quartz. D'autres types de verres ferro-électriques à base de lanthane, de bore et de germanate, sont aussi d'excellents candidats.

H. Vigouroux • B. Le Garrec CEA - Cesta
E. Fargin • S. Gomez Institut de chimie et de la matière condensée de Bordeaux (ICMCB - UPR9048), Pessac
V. Rodriguez • F. Adamietz • M. Dussauze Institut des sciences moléculaires, UMR 5255 CNRS – Université de Bordeaux 1, Talence
S. Lotarev • V. Sigaev Mendeleev University of Chemical Technology, Moscou
E. Kamitsos • G. Mountrichas Theoretical and Physical Chemistry Institute, Athènes

Les lasers de puissance ont besoin de convertisseurs de fréquence car la longueur d'onde laser est en général voisine de 1 µm dans les verres et les cristaux dopés au néodyme ou à l'ytterbium. Pour les applications à haute intensité, nous travaillons en général dans le vert (0,5 µm) en ce qui concerne les lasers pour pomper les cristaux de saphir dopés au titane et aussi dans le proche UV (0,35 µm) pour les applications à forte densité d'énergie comme la physique des plasmas et la fusion inertielle. La réalisation des cristaux est en général très délicate car les cristaux vont croître lentement et difficilement à partir d'une solution où la température est supérieure à la température de fusion du matériau considéré. Les dimensions classiques des cristaux les plus couramment utilisés, comme le BBO, le LBO et le KTP, sont de 3 à 5 mm de section et de 5 à 10 mm de longueur même si des efforts importants ont permis de fabriquer et de tester des cristaux de LBO de 65 mm de section. Le KDP est le seul cristal connu qui peut pousser en très grandes dimensions jusqu'à 50 cm de section, à partir d'un germe dans une solution liquide dans des conditions normales de température et de pression.

Nous cherchons donc à fabriquer des convertisseurs de fréquence plus simplement et idéalement comme le serait la fabrication d'un verre. Tous les verres présentent un effet non linéaire d'ordre 3 mais ce n'est pas suffisant car, pour créer un effet non linéaire d'ordre 2, il faut briser la symétrie existante : la conversion de fréquence est un processus à trois ondes qui ne peut exister que dans les cristaux non centro-symétriques. Il faut donc, dans un premier temps, choisir les matériaux constituant le verre et, dans un deuxième temps, provoquer l'orientation de cette structure. La composition vitreuse Li_2O-Nb_2O_5–SiO_2 (LNS) a été choisie car le niobate de lithium ($LiNbO_3$) est un cristal ferroélectrique à forte permittivité diélectrique : un très fort signal d'optique non linéaire est attendu par la précipitation de microcristaux ferroélectriques de $LiNbO_3$ si la condition de transparence optique est obtenue [1]. Notre méthode d'orientation repose,

Figure 1. Image MEB en transmission montrant des cristallites de niobate de lithium dans le verre LNS.



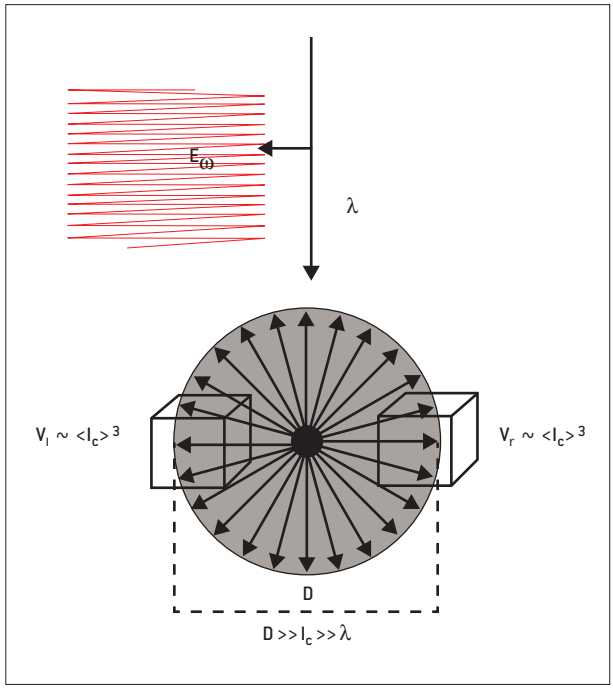


Figure 2.
Contribution cohérente de deux volumes identiques dans une cristallite.

quant à elle, sur la gestion des cycles thermiques pendant et après les étapes de nucléation et de cristallisation (poling thermique).

Des verres micro-cristallisés ont été obtenus par traitements thermiques en suivant différents cycles de nucléation et de cristallisation. Nous avons d'abord mesuré la densité des échantillons afin de connaître la fraction de verre cristallisé, puis la surface et le volume des verres traités thermiquement sont analysés par diffraction des rayons X sur poudre (DRX) et microscopie électronique à balayage (MEB) : des cristallites sphériques de 35 à 45 µm de diamètre incluses dans le verre sont parfaitement identifiés (**figure 1**). Nous mesurons aussi l'indice optique car les fortes différences d'indice entre les cristallites et le verre sont à l'origine de phénomènes de diffusion qui altèrent la transparence, l'objectif étant évidemment de synthétiser des matériaux de grande qualité optique introduisant le moins de perte possible.

Dans le but d'investir les propriétés d'optique non linéaire du matériau, le signal de génération du second harmonique est étudié en collectant les spectres de transmission de franges de Maker, avec différentes polarisations du faisceau fondamental incident et du faisceau harmonique transmis. Les signaux sont enregistrés pour des échantillons traités thermiquement avant et après avoir enlevé une couche de surface d'environ 50 µm. Ainsi, les résultats obtenus montrent que pour certains échantillons, une cristallisation très intense et orientée à la surface disparaît progressivement dans le volume, tandis que pour d'autres échantillons, le même signal d'optique non linéaire est obtenu en surface et en volume. Ces signaux dans le volume sont très originaux car ils signifient que la taille des cristallites de $LiNbO_3$ est suffisante pour présenter des propriétés ferroélectriques et non linéaires permanentes. De plus, les mesures réalisées indiquent que les cristaux orientés donnent lieu à une valeur élevée de susceptibilité de second ordre, estimée cinq fois plus importante à 1 064 nm que le α-quartz que l'on a pris comme référence.

Des mesures complémentaires en microscopie Raman confirment que notre verre est constitué de cristallites de niobate de lithium dans un environnement vitreux. Puisque le volume des cristallites est bien supérieur au volume de cohérence, des volumes identiques (**figure 2**) interférent et devraient annuler le signal de second harmonique. Toutefois, comme la distance moyenne entre les cristallites est bien supérieure à la longueur de cohérence, on détecte macroscopiquement un signal incohérent et isotrope qui correspond classiquement à de l'hyperdiffusion Rayleigh.

RÉFÉRENCES

[1] H. VIGOUROUX, E. FARGIN, A. FARGUES, B. LE GARREC, M. DUSSAUZE, V. RODRIGUEZ, F. ADAMIETZ, G. MOUNTRICHAS, J. KAMITSOS, J S. LOTAREV, V. SIGAEV, "Crystallization and Second Harmonic Generation of Lithium Niobium Silicate Glass Ceramics", *J. Am. Ceram. Soc.*, **94**(7), p. 2080-2086 (2011).

Dynamique électronique induite par laser dans les (D)KDP

La tenue au flux reste un enjeu pour le LMJ. Le centre du Ripault sollicité pour l'amélioration du comportement au flux des cristaux non linéaires KDP (KH_2PO_4) et DKDP (KD_2PO_4), a développé le banc SOCRATE et une modélisation spécifiques. Ce banc nanoseconde ne permettant de comprendre l'amorçage de l'endommagement, une collaboration avec le CEA – Saclay s'est engagée en 2006 pour effectuer des mesures interférométriques femtosecondes résolues en temps en mode pompe-sonde. Cette méthode permet d'accéder aux dynamiques d'excitation/relaxation des électrons nécessaires à la compréhension de l'endommagement. On montre que les électrons de valence sont excités par absorption multiphotonique et que leur relaxation dépend de l'isotope (hydrogène ou deutérium). Sur la base d'hypothèses sur les mécanismes physiques mis en jeu lors de l'interaction, un modèle évalue les diverses populations électroniques et, par comparaison aux résultats expérimentaux, détermine des constantes physiques comme les sections efficaces d'absorption multiphotonique ou les temps caractéristiques de relaxation.

G. Duchateau • G. Geoffroy Centre lasers intenses et applications (CELIA), UMR 5107 CNRS – CEA – Université Bordeaux 1
A. Dyan • H. Piombini CEA – Le Ripault
G. Geoffroy • S. Guizard CEA – Saclay

Les cristaux de (D)KDP utilisés pour la conversion de fréquence ont un seuil de dommage limitant le développement des lasers de puissance [1]. Les impulsions de durée 3 ns et de fluence 6 J/cm² induisent des éclairements (E) de 2 GW/cm² pouvant créer des dommages (LID – Laser-induced Damage) localisés. Un postulat est qu'un défaut précurseur, présent avant ou rapidement induit par l'impulsion laser, est à l'origine du LID. Une des hypothèses sur leur nature est l'existence de clusters de lacunes d'oxygène ou d'hydrogène associés à un défaut structural [2]. Des études pour la compréhension de l'endommagement des cristaux ont été initiées au Ripault en 2001 grâce au banc SOCRATE [3]. Mais ce moyen ne permet pas de comprendre les processus d'amorçage du LID. L'évolution du LID en paliers successifs selon la longueur d'onde peut être expliquée par l'introduction au cours de l'interaction d'états localisés dans le gap (SLG – States Located in band Gap). Pour aider au développement des modèles traitant du LID en régime ns [4] et comprendre les mécanismes physiques responsables de l'amorçage, nous utilisons une expérience d'interférométrie pompe/sonde femtoseconde (fs) résolue en temps pour accéder à la dynamique d'excitation et de relaxation des porteurs [5]. Pour interpréter les résultats, un modèle cinétique évaluant les différentes populations électroniques a été développé. Cette approche a permis de déterminer des paramètres physiques régissant l'interaction d'une impulsion avec les cristaux de (D)KDP.

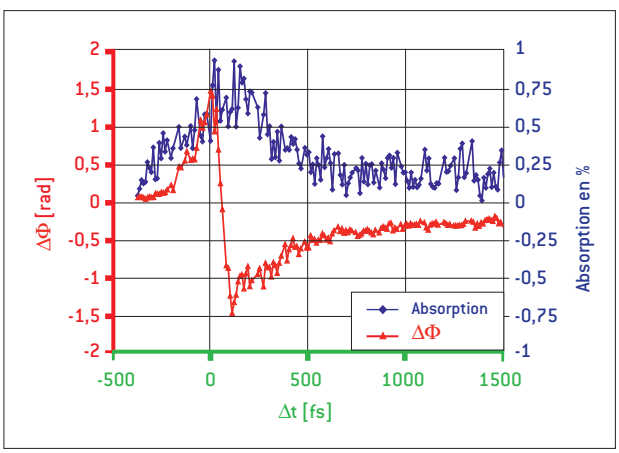
Procédure

Pour cette expérience, nous utilisons le laser LUCA (CEA– Saclay) qui délivre des impulsions de 55 fs à 800 nm (1,55 eV). L'évolution du matériau pendant et après l'interaction avec une impulsion de pompe est sondée par une méthode interférométrique dont le montage est décrit dans [5]. Les variations d'indice dues à cette pompe induisent un déphasage $\Delta\Phi$. On montre qu'il est fonction de la densité d'électrons, ces derniers étant soit promus dans la bande conduction, soit piégés dans les SLG [5]. Cette technique permet d'identifier les mécanismes d'excitation et de suivre en temps réel la relaxation.

Résultats

La figure 1 montre l'évolution de $\Delta\Phi$ selon le décalage temporel entre pompe et sonde (Δt) à E donné pour le KDP. Quand la pompe et la sonde se recouvrent (faible Δt), $\Delta\Phi$ est positif dû à l'effet Kerr. Lorsque suffisamment d'électrons de

Figure 1. Évolution du déphasage $\Delta\Phi$ en fonction du décalage temporel pompe-sonde (Δt) à un éclairement $\mathcal{E}$ donné pour le KDP.



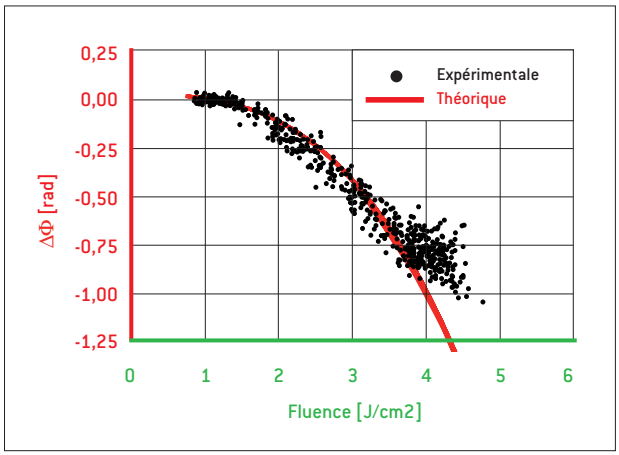


Figure 2.
Évolution du déphasage en fonction de la fluence laser pour un retard de 150 fs.

conduction sont produits, ΔΦ devient négatif. Les électrons se recombinent alors, entraînant à un retour de ΔΦ vers 0. On constate d'après la **figure 1** que la dynamique de relaxation comporte 2 échelles de temps. La première, rapide avec un temps caractéristique de l'ordre de 300 fs, est attribuée à la formation d'exciton auto-piégé (STE – Self-trapped Exciton) [5]. La seconde, beaucoup plus lente, est de l'ordre de la dizaine de ps, et dépend de l'isotope d'après les mesures effectuées sur les (D)KDP. Ceci laisse penser que la migration d'atomes d'hydrogène ou de deutérium est impliquée dans le processus de relaxation électronique.

Afin d'obtenir des informations sur le mécanisme d'excitation des porteurs, on étudie l'évolution de ΔΦ en fonction de E. Dans le cas du KDP idéal, sachant que le gap est compris entre 7,1 eV et 7,7 eV [6], un électron de valence doit absorber 5 photons (à 1,55 eV) pour être promu dans la bande de conduction. ΔΦ devrait alors varier comme E^5. Pour la dynamique rapide pour $\Delta t = 150$ fs (**figure 2**), l'expérience montre que ΔΦ suit une loi en E^3 signifiant un processus d'ordre 3. La loi est linéaire pour la dynamique lente ($\Delta t = 20$ ps).

Ces résultats sont expliqués en introduisant des SLG ayant pour effet d'abaisser l'ordre multiphotonique. Ces SLG seraient dus à la présence de défauts tels que des lacunes d'hydrogène ou d'oxygène [2]. On a ainsi mis en évidence deux processus d'excitation, chacun ayant sa propre cinétique de relaxation qui sont associés à la production d'électrons de conduction pouvant rapidement se recombiner (STE) ou briser des liaisons hydrogène pour former de l'hydrogène interstitiel dans un temps de l'ordre de 1,6 ps. La relaxation des électrons ne s'effectue qu'après la migration de ces interstitiels et le réarrangement du réseau cristallin qui prennent des dizaines de ps.

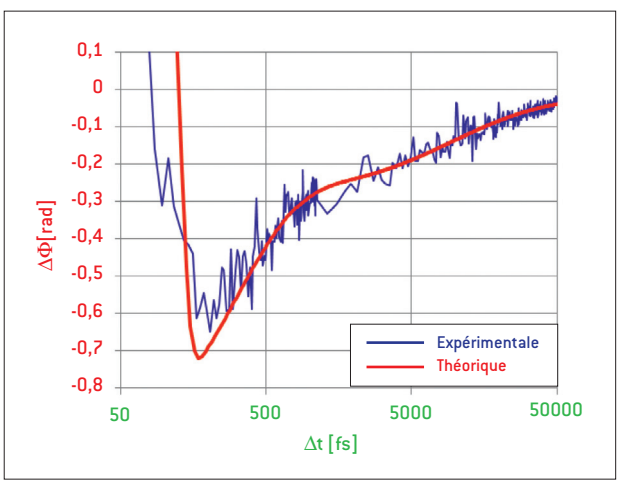


Figure 3.
Comparaison théorie-expérience du déphasage en fonction du décalage temporel pour un cristal de DKDP soumis à un éclairement de 36.8 TW/cm^2.

Modélisation

Les processus sont modélisés par des équations de taux pour évaluer les populations électroniques sur les niveaux [2]. On accède à l'évolution de ΔΦ qui est comparé aux valeurs expérimentales sur la **figure 3** pour $E = 36{,}8$ TW/cm^2, selon le retard pompe/sonde. Le modèle reproduit la dynamique de relaxation pour diverses échelles de temps. Pour obtenir ces valeurs, nous ajustons des paramètres libres du modèle tels que les sections efficaces d'absorption multiphotonique ou de capture électronique. Des ordres de grandeurs sont retrouvés : par exemple, on obtient la valeur de la section efficace multiphotonique du troisième ordre $\sigma_3 = 1{,}3\text{x}10^{-82}$ cm^{6}s^{-2} [5]. En outre, cette approche permet de mieux comprendre les mécanismes physiques de l'interaction.

Conclusion

La dynamique des porteurs dans le (D)KDP sont étudiées par interférométrie fs. Cette étude montre l'existence de 2 processus assistés par la présence d'états électroniques dans le gap. Le premier processus est du 3^e ordre avec une dynamique de relaxation rapide (300 fs), correspondant à des STE. Le second (~ ps, du 1er ordre) est associé à la migration d'atomes H/D dans le réseau et est sensible au taux de deutération. La modélisation a identifié des paramètres et des mécanismes de l'interaction. Des essais sont prévus avec le troisième harmonique 3ω de LUCA afin d'exciter d'autres états de ces cristaux.

RÉFÉRENCES

[1] **D. YOREO *et al***, "Developing KH^2PO^4 and KD^2PO^4 crystals for the world's most powerful laser", *Int. Mater. Rev.*, **47**(3), p. 113-152 (2002).

[2] **G. DUCHATEAU, A. DYAN, H. PIOMBINI, S. GUIZARD,** « Electron-hole dynamics in normal and deuterated KH(2)PO(4) illuminated by intense femtosecond laser pulses", *Phys. Rev. B*, **83**, 075114 (2011).

[3] **B. BERTUSSI, H. PIOMBINI, D. DAMIANI, M. POMMIES, X. LE BORGNE, D. PLESSIS**, "SOCRATE: an optical bench dedicated to the understanding and improvement of a laser conditioning process", *Appl. Optics,* **45**(33), p. 8506-8516 (2006).

[4] **A. DYAN, F. ENGUEHARD, S. LALLICH, H. PIOMBINI, G DUCHATEAU,** « Scaling laws in laser-induced potassium dihydrogen phosphate crystal damage by nanosecond pulses at 3ω », *J. Opt. Soc. Am., B*, **25**(6), p. 1087-1095 (2008).

[5] **P. MARTIN, S. GUIZARD, PH. DAGUZAN, G. PETITE,** "Subpicosecond study of carrier trapping dynamics in wide-band-gap crystals", *Phys. Rev. B*, **55,** p. 5799–5810 (1997).

[6] **A. DYAN G. DUCHATEAU, S. ESLAVA, J.-L. STEHLE, D. DAMIANI, H. PIOMBINI,** "Transmission measurements in rapid growth KDP and DKDP crystals", *J. Mod. Optics,* **56**(1), p. 27-31 (2009).

Conductivité thermique de l'hydrogène

La conductivité thermique de l'hydrogène a été évaluée à partir d'une méthode quantique dans un domaine thermodynamique pertinent pour la fusion par confinement inertiel. La conduction thermique joue en effet un rôle primordial dans la physique de l'allumage lorsqu'un phénomène de réactions thermonucléaires auto-entretenues prend forme. Cette approche microscopique a permis de jauger la validité des modèles de conductivité couramment utilisés dans l'élaboration d'expériences de fusion sur les lasers de type Mégajoule.

F. Lambert • V. Recoules • A. Decoster • J. Clérouin CEA – DAM Île-de-France
M. P. Desjarlais Sandia National Laboratories, Albuquerque, USA

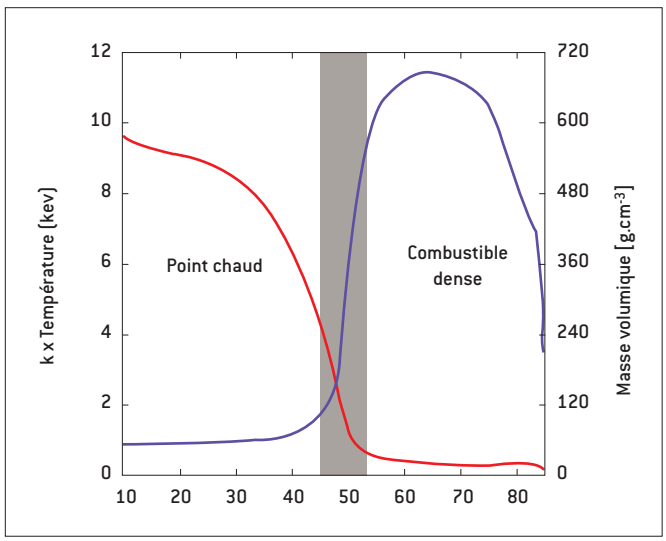
Sous les termes de fusion par confinement inertiel (FCI) se cachent l'atteinte de conditions thermodynamiques permettant la propagation d'une onde thermonucléaire au sein d'un mélange de deutérium (D) et de tritium (T). La mise en condition du mélange nécessite la maîtrise de phénomènes macroscopiques variés : mécanique des fluides, transfert d'énergie par le rayonnement électromagnétique, conduction thermique par les électrons ou physique nucléaire à travers les réactions de fusion. Les outils numériques de dimensionnement des expériences de ce domaine couplent ces différentes descriptions - sous l'intitulé d'hydrodynamique radiative - et se basent sur la physique atomique sous-jacente. Cette dernière intervient sous la forme de coefficients traduisant la réponse des matériaux aux perturbations mécaniques (équations d'état), radiatives (opacités) ou thermiques (conductivité).

L'un des concepts élaborés pour la création de l'onde thermonucléaire est appelé allumage par point chaud. Après une compression quasi-isentropique d'une coquille solide de D-T, une petite quantité de combustible au centre de la cible est amenée à une masse volumique et une température suffisantes pour engendrer la fusion, créant ainsi un point chaud. Ce dernier sert d'allumette au système pour générer l'onde de combustion thermonucléaire qui va ensuite balayer l'édifice dense (figure 1). La naissance et la propagation des réactions de fusion sont dépendantes de plusieurs phénomènes dont deux, couplés, sont particulièrement importants : le ralentissement des noyaux d'hélium provenant des premières réactions et la conduction thermique électronique.

Celle-ci joue un rôle primordial dans la physique de l'allumage puisqu'elle est responsable du chauffage du matériau dense en contact avec le point chaud permettant ainsi un dépôt d'énergie par les particules α efficace. Au sein de nos outils de simulation, la conduction thermique est décrite par une loi de Fourier dont la conductivité thermique doit être modélisée par la physique qui gouverne l'échelle microscopique. Plusieurs descriptions approximatives ont été proposées mais n'avaient pu, jusqu'à présent, être validées par des approches plus fondamentales.

L'une d'entre elles, la dynamique moléculaire quantique (DMQ) [1,2], permet de calculer les propriétés des matériaux en se basant sur la nature des atomes les constituant : les noyaux, particules classiques, sont couplés de manière cohérente à une description quantique de la structure électronique.

Figure 1. Profils de température et de masse volumique lors de la phase d'allumage. La zone grisée correspond au lieu où la conduction thermique est dominante.



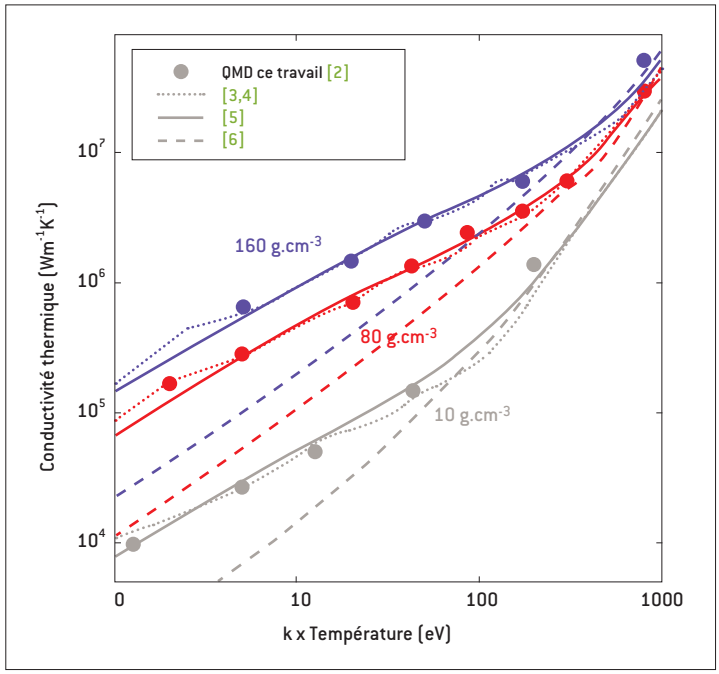


Figure 2.
Comparaison des modèles de conductivité thermique avec les résultats de dynamique moléculaire quantique en fonction de la température et de la masse volumique.

Cette technique est largement utilisée pour décrire les propriétés de transport électronique dans des domaines thermodynamiques variés, allant de la matière comprimée à celle très détendue, et a déjà été mise à profit dans plusieurs thématiques d'intérêt pour le CEA comme les équations d'état ou les opacités.

La physique du point chaud est un sujet extrêmement difficile à aborder directement par la DMQ compte tenu des hautes températures requises. Ces dernières demandent de décrire les électrons par un nombre gigantesque d'états quantiques rendant les calculs extrêmement coûteux, y compris avec les machines parallèles actuelles. Afin d'avoir accès aux conditions thermodynamiques pertinentes, une seconde approche, dite sans orbitale, a été jointe à celle quantique. Cette méthode fournit une description approximative de la structure électronique, mais valable dans le régime thermodynamique du point chaud. Elle permet de calculer rapidement les positions des noyaux au cours du temps, injectées ensuite dans un code quantique – ABINIT – qui déduit de la structure électronique les coefficients de transport. Ceux-ci sont extraits du calcul à l'équilibre thermodynamique par l'intermédiaire d'une théorie perturbative. Atteindre des conditions aussi extrêmes de température et de masse volumique a cependant requis un effort de développement conséquent du code ABINIT.

Les conductivités thermiques ainsi obtenues sont comparées aux modèles existants dans les codes d'hydrodynamique radiative pour en jauger la validité (figure 2). Parmi les trois modèles étudiés, modèles couramment mis en œuvre en FCI mais également en astrophysique, deux, dits de Hubbard-Spitzer [3,4] et d'Ichimaru [5] sont performants, mais un troisième, développé par Lee et More [6], s'est révélé erroné pour les températures les plus faibles.

Cette étude a permis de montrer que nos équipes avaient en leur possession une chaîne de calcul cohérente permettant de venir en soutien des simulations hydrodynamiques afin de valider les modèles approximatifs mis en jeu. Cette chaîne peut maintenant être utilisée dans d'autres domaines thermodynamiques tels que celui des instabilités hydrodynamiques des cibles de FCI, pénalisantes pour l'allumage et vis-à-vis desquelles la conduction thermique est une source de stabilisation.

RÉFÉRENCES

[1] **V. RECOULES, F. LAMBERT, A. DECOSTER, B. CANAUD, J. CLEROUIN,** « Ab initio determination of thermal conductivity of dense hydrogen plasmas», *Phys. Rev. Lett.*, 075002 (2009).

[2] F. **LAMBERT, V. RECOULES, A. DECOSTER, J. CLÉROUIN, M. DESJARLAIS,** « On the transport coefficients of hydrogen in the inertial confinement fusion regime », *Phys. Plas.*, 056306 (2011).

[3] **W. B. HUBBARD,** « Studies in stellar evolution .V. transport coefficients.", *Astrophys. J.*, **146**(3), p. 858-870 (1966).

[4] **L. SPITZER, R. HARM,** "Transport phenomena in a completely ionized gas", *Phys. Rev.*, **89**(5), p. 977-981 (1953).

[5] **S. ICHIMARU, S. TANAKA,** Theory of interparticle correlations in dense, high-temperature plasmas. V. Electric and thermal conductivities, *Phys. Rev. A*, **32**, p. 1790-1798 (1985).

[6] **Y. T. LEE, R. M. MORE,** "An electron conductivity model for dense-plasmas", *Phys. Fluids*, **27**(5), p. 1273-1286 (1984).

Vers la fusion thermonucléaire à gain par confinement inertiel avec l'allumage par choc

La fusion thermonucléaire par confinement inertiel conventionnelle en attaque indirecte ou directe est un mécanisme à seuil utilisant un allumage isobare où les pressions dans le point chaud et le combustible froid s'équilibrent. L'implosion et l'allumage sont réalisés dans une même étape par un éclairement (laser ou rayonnement X) dimensionné pour assurer l'auto-allumage des réactions de fusion thermonucléaire dans le point chaud central à la fin de l'implosion.

B. Canaud • S. Depierreux • S. Laffite • V. Brandon • G. Debras • C. Goyon • C. Rousseaux CEA – DAM Île-de-France
M. Temporal ETSIA, Universidad Politecnica de Madrid, Espagne
S. Baton • M. Koenig • C. Labaune Laboratoire à l'utilisation des lasers intenses (LULI), École Polytechnique, Palaiseau
X. Ribeyre Centre lasers intenses et applications (CELIA), UMR 5107 CNRS - CEA - Université Bordeaux 1

Le principe de l'allumage par choc est de découpler la phase d'allumage de celle de compression. En cours d'implosion, un choc fort est créé et se focalise au centre de la cible afin de générer les conditions hydrodynamiques nécessaires à l'allumage. Est ainsi produite une configuration non-isobare où la pression dans le point chaud est supérieure à la pression dans le milieu fusible deutérium-tritium (DT) froid. Le seuil d'allumage dépend du rapport de ces pressions : plus la pression du point chaud est élevée, plus la cible s'allume facilement. En pilotant cette pression grâce au choc fort convergent, il est possible d'allumer, de manière contrôlée, des cibles ne brûlant pas en configuration isobare. Le choc est créé par une impulsion laser supplémentaire correctement synchronisée, de quelques centaines de picosecondes de durée, et

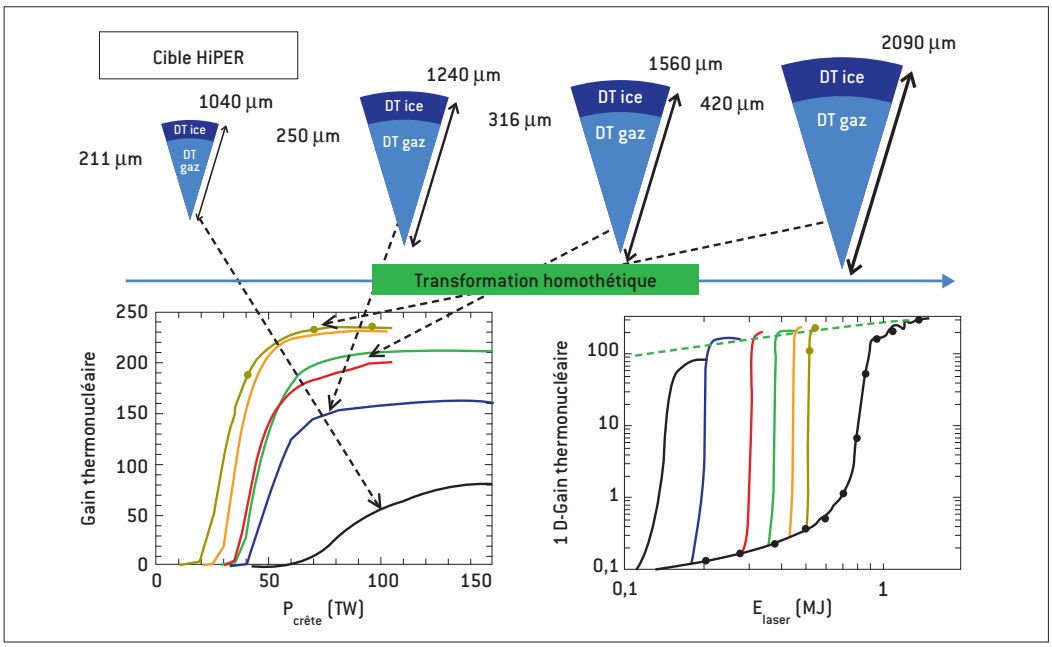


Figure 1. Cibles issues de la transformation homothétique de la cible HiPER. Le seuil d'auto-inflammation est visible par la transformation (courbe noire avec des points).

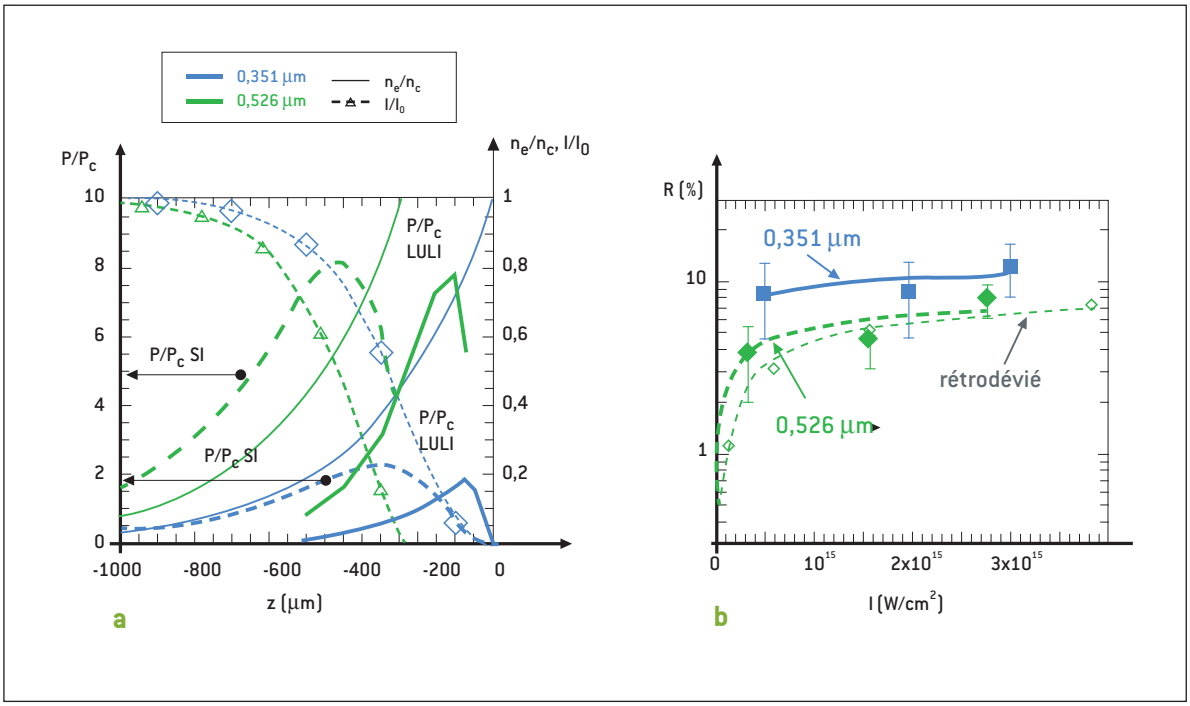


Figure 2.
(**a**) : densité électronique et intensité laser sur l'intensité incidente pour un profil de densité exponentiel. P/P_c est donnée à une intensité de $3x10^{15}$ W/cm^2 (pour $P/P_c \geq 1$, le laser subit un éclatement angulaire) ; (**b**) : réflectivités Brillouin.

de puissance et intensité accessibles avec le laser MégaJoule (LMJ). De plus, ce schéma permet d'espérer des gains totaux très élevés car ils permettent de réduire l'énergie utile à l'assemblage. L'effort est alors reporté sur le pic laser d'allumage.

Ce schéma, qui se prête bien à l'attaque directe, a fait l'objet de récentes études [1,2] pour le LMJ. Partant de la cible prévue pour l'allumage rapide sur la future installation HiPER (High Power laser Energy Research facility) pour laquelle l'énergie de compression ne permet pas l'auto-allumage, une famille de cibles homothétiques a été construite. Différentes cibles plus ou moins proches du seuil d'allumage ont alors été allumées par choc (figure 1). La continuité entre l'allumage par choc et l'allumage conventionnel par point chaud est vérifiée par le fait que plus la cible est proche de son seuil, moins l'allumage par choc requiert de puissance laser. Au seuil, le choc n'est plus nécessaire. Il est donc possible de dimensionner des points de fonctionnement présentant des gains très élevés (> 200) avec des puissances laser d'allumage par choc raisonnables (< 100 TW) et des éclairements modérés (< 10^{15} W/cm^2). À l'inverse, lorsque la cible est loin de son seuil d'auto-inflammation, les puissances requises conduisent à des éclairements laser particulièrement élevés.

Un compromis possible consiste à choisir les paramètres laser (énergie/puissance/longueur d'onde) les moins contraignants pour l'installation, tout en maintenant un couplage efficace de l'impulsion de choc au plasma de couronne de la cible comprimée. Les couplages résonnants entre le laser et le plasma sont susceptibles de limiter l'énergie absorbée *via* des pertes par rétrodiffusion et par filamentation provoquant l'élargissement du faisceau lors de sa propagation.

Des expériences réalisées au LULI dans des plasmas préformés présentant un profil de densité exponentiel pour deux longueurs d'onde laser (0,526 et 0,351 µm) [3,4], approchent, dans des plasmas plus courts et plus froids, les paramètres pertinents pour la propagation de l'impulsion de choc (figure 2a). À faible éclairement (3 à 5.10^{14} W/cm^2), les seuils de déclenchement de la rétrodiffusion Brillouin stimulée sont en accord avec la dépendance en $I\lambda$ du gain. À plus forte

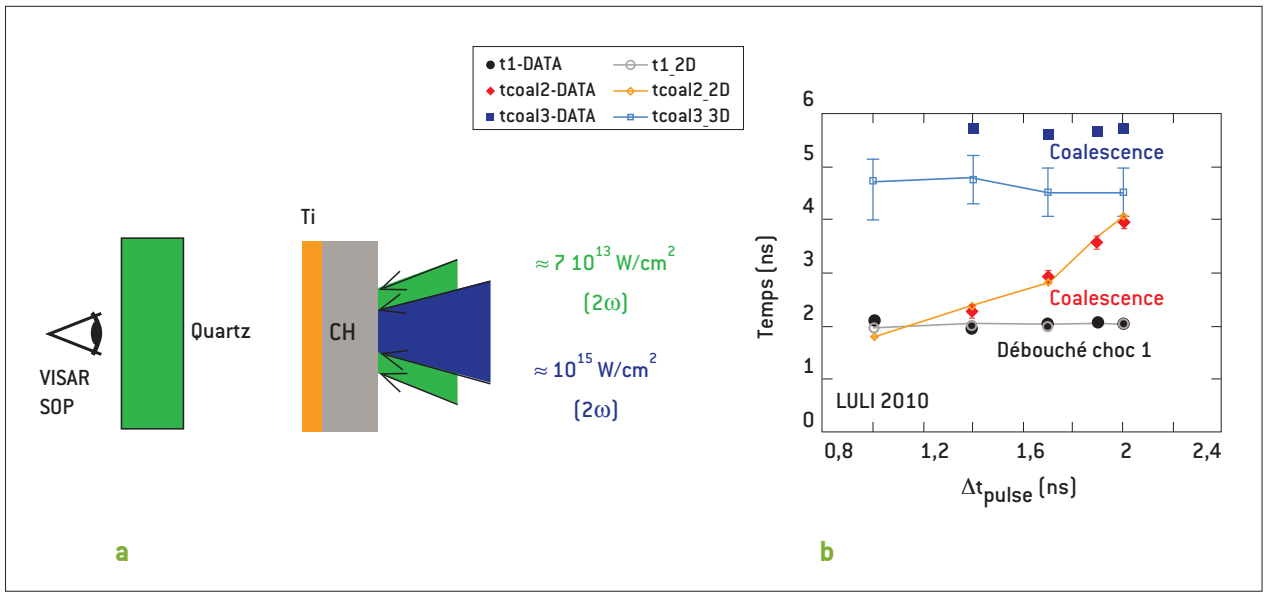


Figure 3. (**a**) :Dispositif expérimental de la première expérience dans le cadre de l'allumage par choc. (VISAR: Velocity Interferometer System for Any Reflector – SOP : Streaked Optical Pyrometer). (**b**) : La mesure du temps de débouché des chocs est correctement restituée par le code numérique.

intensité (3 à 5.10^{15} W/cm^2), ces expériences reproduisent des gains Brillouin élevés comme attendu pour l'impulsion de choc qui interagit avec un plasma quasi homogène en vitesse. Les réflectivités saturent à 10-15% avec 10% de pertes supplémentaires pour la lumière rétrodiffusée en dehors du cône incident en cas d'élargissement angulaire (**figure 2b**). Des calculs à l'aide du code HERA montrent que la saturation de la rétrodiffusion Brillouin vient de son interaction avec la filamentation, ce qui peut s'appliquer à l'allumage par choc. Des études complémentaires restent à mener pour évaluer l'impact de l'éclatement des faisceaux laser dans le cas d'une irradiation sphérique multifaisceaux.

Une fois contrôlé le couplage de l'énergie laser à la cible, une étape essentielle à la validation du principe de l'allumage par choc est de démontrer la capacité à générer un choc fort de plusieurs dizaines de Mbars, dans un plasma déjà choqué. Dans ce but, une campagne [5] en géométrie plane a été menée (**figure 3a**) au LULI dans le cadre du consortium PHARE de l'Institut lasers et plasmas (ILP). Pour des conditions où l'impulsion de choc se couple efficacement au plasma (rétrodiffusion < 15%), nous avons ainsi observé la trajectoire de deux chocs générés, l'un par une impulsion d'intensité relativement faible, 7.10^{13} W/cm^2, l'autre à une intensité de 10^{15} W/cm^2. Le bon accord calcul - mesure (**figure 3b**) sur la chronométrie des deux chocs et de leur coalescence a prouvé notre maîtrise de l'hydrodynamique de ces phénomènes [6]. Une seconde campagne en octobre 2011 a conclu à la nécessité d'éviter la fréquence principale, 1ω, pour le pic laser. Convertir la fréquence, au moins jusqu'à 2ω est indispensable. La prochaine étape est le passage à la géométrie sphérique.

RÉFÉRENCES

[1] **B. CANAUD, M. TEMPORAL,** "High-gain shock ignition of direct-drive ICF targets for the Laser Mégajoule", *New J. Phys.*, **12**, 043037 (2010).

[2] **B. CANAUD, S. LAFFITE, M. TEMPORAL,** "Shock ignition of direct-drive Double-Shell targets", *Nucl. Fusion*, **51**, 062001 (2011).

[3] **S. DEPIERREUX *et al*,** "Interaction physics for the shock ignition scheme of inertial confinement fusion targets", *Plasmas Phys. Control. Fusion*, **53**, 124034 (2011).

[4] **S. DEPIERREUX *et al*,** "Experimental investigation of the stimulated Brillouin scattering growth and saturation at 526 and 351 nm for direct drive and shock ignition", *Phys. Plasmas*, **19**, 012705 (2012).

[5] **S. BATON *et al*,** "Experiment in planar geometry for shock ignition studies", *Phys. Rev. Lett.*, **111**, 15500 (2012).

[6] **S. LAFFITE *et al*,** "Interpretation of planar shock ignition experiments at LULI", *Bull. Am. Phys. Soc.*, **56**(12), 222 (2011).

Analyse des spectres d'absorption du fer et du cuivre mesurés dans le domaine X auprès du laser LULI 2000

Dans la région spectrale des transitions *2p-nd*, $n \geq 3$, les opacités de plasmas d'éléments de numéros atomiques Z voisins ont été mesurées et analysées avec des codes de physique atomique. Les simulations hydrodynamiques, fondées sur les mesures de température radiative effectuées à l'aide du spectromètre µDMX, ont été utilisées pour estimer les températures et densités des échantillons chauffés par une cavité laser. Les comparaisons avec les mesures permettent alors de valider les codes d'opacité dans les cas choisis et d'élucider un certain nombre d'effets importants dans la modélisation comme l'élargissement thermique des structures d'absorption, la séparation spin-orbite et l'interaction de configurations relativistes.

P. Arnault • T. Caillaud • J. Fariaut • F. Gilleron • J.-C. Pain • Q. Porcherot • C. Reverdin • V. Silvert • B. Villette CEA – DAM Île-de-France
T. Blenski • G. Loisel • M. Poirier • F. Thais CEA – DSM/IRAMIS, Saclay
S. Bastiani-Ceccotti Laboratoire pour l'utilisation des lasers intenses (LULI), École polytechnique, Palaiseau
S. Turck-Chièze CEA – DSM/IRFU, Saclay
W. Fölsner Max Planck Institut für Quantenoptik, Munich, Allemagne
F. de Gaufridy de Dortan Universidad Politecnica de Madrid, Espagne

Des mesures d'opacité de plasmas d'éléments voisins en Z, fer (Z=26), nickel (28), cuivre (29) et germanium (32), ont été effectuées auprès de l'installation LULI 2000. La région spectrale correspond aux transitions électroniques 2*p*-*nd*, $n \geq 3$. Les températures radiatives dans la cavité, mesurées à l'aide du spectromètre large bande µDMX [1], ont servi de point de départ pour des simulations hydro-radiatives (figure 1). Les températures des échantillons sont alors autour de 20 eV et les densités de l'ordre de 0,01 g/cm^3. Selon nos prévisions théoriques la séparation en deux des structures 2*p*-3*d*, due au couplage spin-orbite, invisible dans le cas du fer, doit apparaître progressivement lorsque *Z* augmente. De plus, les structures 2*p*-3*d* sont sensibles à l'interaction de configurations relativistes (ICR). Les transitions mesurées ont été comparées [1,2] aux résultats théoriques qui sont obtenus à l'aide du code d'opacité statistique SCO [3] des deux codes détaillés HULLAC [4] et FAC [5], et du nouveau code mixte SCORCG [6]. Bien qu'approximatif dans la description des structures d'absorption, le code SCO permet de tenir compte d'un grand nombre d'états électroniques excités ainsi que de l'écrantage dû aux électrons libres du plasma. Les codes détaillés HULLAC et FAC sont fondés sur un calcul détaillé des raies mais, à cause de la complexité et du temps de calcul requis, ils deviennent en pratique inutilisables en présence de nombreux états atomiques. Le code SCORCG, développé récemment au CEA – DAM Île-de-France, est de nature mixte : fondé sur le code SCO et le modèle RCG de Cowan [7], il permet un calcul détaillé des raies d'un certain nombre de configurations pertinentes, traitant les configurations restantes de manière statistique.

Nous présentons ici deux comparaisons théorie-expérience : la première concerne un plasma de fer, élément important en astrophysique, et la seconde un

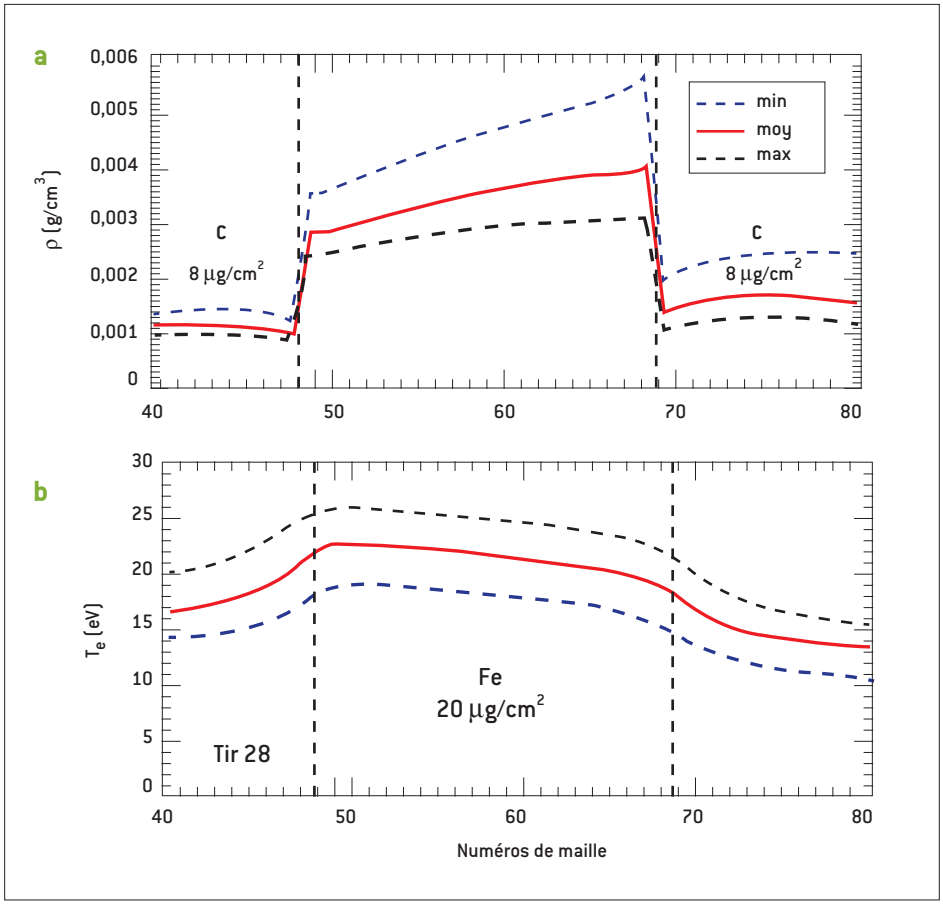


Figure 1. Simulation hydrodynamique d'un échantillon de fer de masse surfacique 20 µg/cm^2 mis en condition par le rayonnement de la cavité. Profils de densité (**a**) et de température (**b**) en fonction des coordonnées lagrangiennes. Les courbes « moy » correspondent aux résultats des mesures de rayonnement données par µDMX. Les courbes « max » et « min » présentent des estimations correspondant aux mesures µDMX décalées d'un écart-type.

plasma de cuivre, constituant de certains ablateurs laser.

Dans le cas du fer (**figure 2**), la forme des structures d'absorption 2*p*-3*d* (entre 16 et 17,5 Å) est qualitativement assez bien reproduite par les codes, mais les transmissions théoriques sont plus faibles que celles mesurées. La séparation spin-orbite des structures 2*p*-3*d* disparaît suite à des effets thermiques, à la fois dans les transmissions mesurées et théoriques. En effet, les calculs ont révélé que l'élargissement des structures 2*p*-3*d* du fer provient surtout de la fluctuation thermique du nombre d'électrons sur la sous-couche 3*p* des ions du plasma. La transmission due aux transitions 2*p*-*nd*, $n > 3$ reste assez élevée et

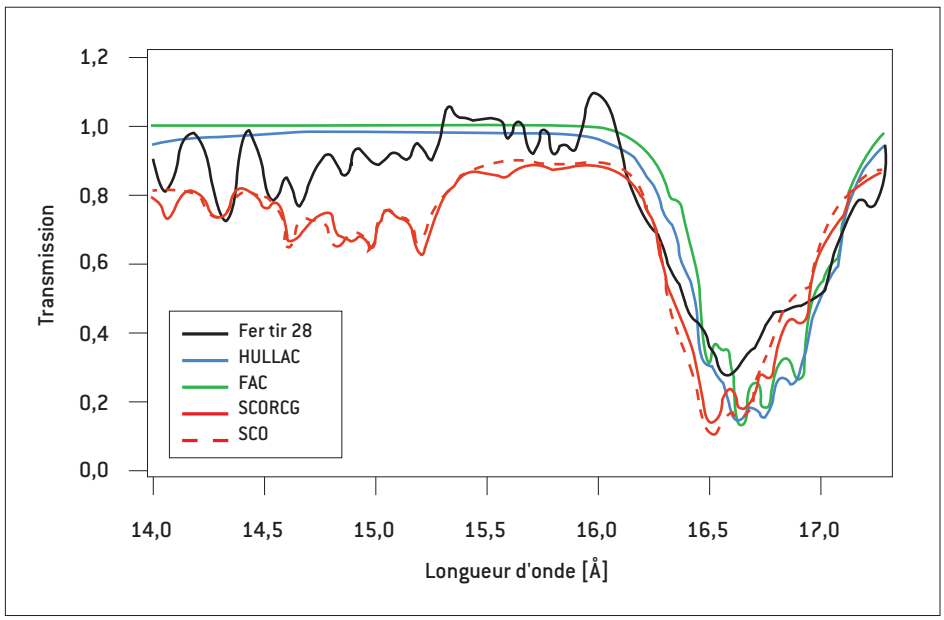


Figure 2. Comparaison de la transmission mesurée d'un échantillon de fer de masse surfacique 20 µg/cm^2 avec les transmissions obtenues à l'aide de divers codes (température de 22 eV et densité de 4 mg/cm^3). Les transitions 2*p*-*nd*, $n > 3$ ne sont pas prises en compte dans les calculs détaillés HULLAC et FAC.

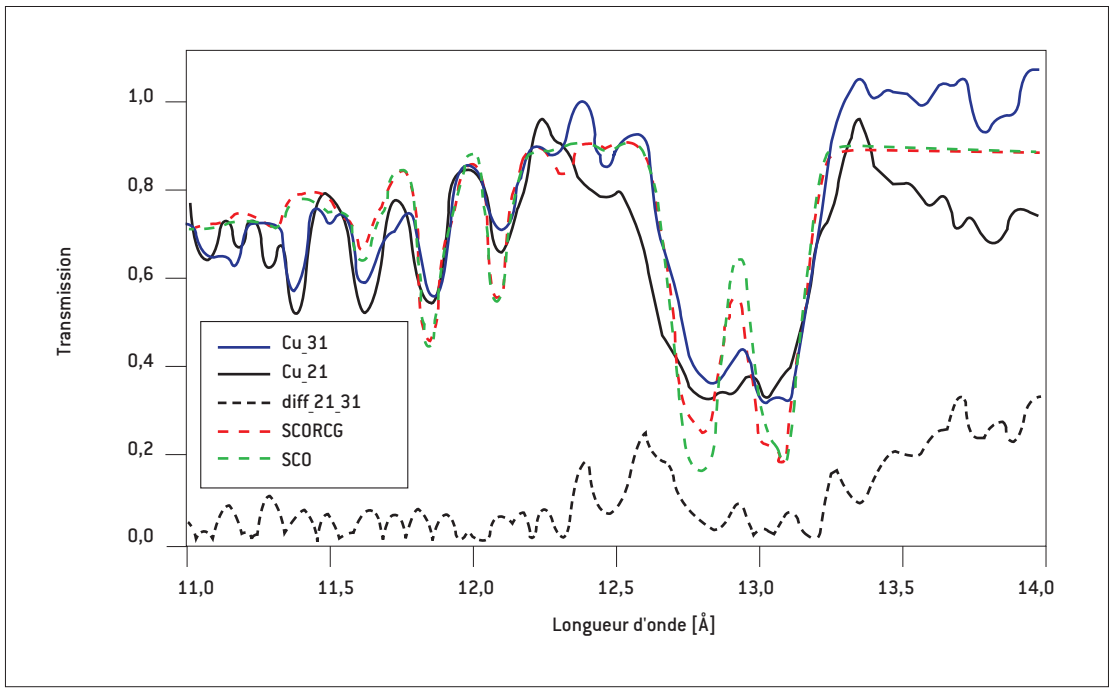


Figure 3. Comparaison des deux transmissions mesurées d'un échantillon de cuivre de masse surfacique 40 µg/cm^2 avec les transmissions des codes statistique SCO et mixte SCORCG (température de 16 eV et densité de 5 mg/cm^3). L'énergie du laser de chauffage est de 64 J pour le tir 31 (Cu_31) et de 80 J pour le tir 21 (Cu_21). La différence entre les deux transmissions expérimentales est également tracée (diff_21_31).

bruitée dans le spectre mesuré (13–15,5 Å) et l'accord théorie-expérience est pratiquement inexistant dans cette gamme spectrale.

Dans le cas du cuivre (figure 3), l'accord entre les valeurs théoriques et expérimentales est meilleur que pour le fer. La séparation spin-orbite des structures 2*p*-3*d* (entre 12,5 et 13,5 Å) est clairement visible, ce qui est conforme aux calculs. L'effet de l'ICR a aussi pu être observé. La transmission théorique obtenue à l'aide du code SCORCG, qui inclut l'ICR de manière exacte, améliore l'accord avec la courbe expérimentale par rapport à SCO qui traite l'ICR de manière approximative. L'analyse des spectres calculés dans le cas du cuivre révèle que la sous-couche 3*p* est ici fermée et que l'élargissement des structures 2*p*-3*d* est principalement dû à la présence d'un grand nombre de raies lié à l'occupation de la sous-couche 3*d* qui fluctue autour de 5, soit à la moitié de sa valeur maximale. Un relativement bon accord théorie-expérience existe également dans la gamme de longueur d'onde des transitions 2*p*-*nd*, $n > 3$. Les différentes comparaisons publiées [1,2] ont montré que les codes statistiques et détaillés sont capables de reproduire les transmissions mesurées dans la région spectrale 2*p*-3*d*. Les positions des structures 2*p*-3*d*, très sensibles à la température, peuvent aussi servir de diagnostic supplémentaire de température, par exemple lors des mesures d'opacités XUV correspondant à des transitions $\Delta n = 0$, importantes en astrophysique.

RÉFÉRENCES

[1] **T. BLENSKI, G. LOISEL, M. POIRIER, F. THAIS, P. ARNAULT, T. CAILLAUD, J. FARIAUT, F. GILLERON, J.-C. PAIN, Q. PORCHEROT, C. REVERDIN, V. SILVERT, B. VILLETTE, S. BASTIANI-CECCOTTI, S. TURCK-CHIÈZE, W. FOELSNER, F. DE GAUFRIDY DE DORTAN,** "Opacity of iron, nickel, and copper plasmas in the x-ray wavelength range: Theoretical interpretation of 2p-3d absorption spectra", *Phys. Rev. E*, **84**, 036407 (2011).

[2] **T. BLENSKI, G. LOISEL, M. POIRIER, F. THAIS, P. ARNAULT, T. CAILLAUD, J. FARIAUT, F. GILLERON, J.-C. PAIN, Q. PORCHEROT, C. REVERDIN, V. SILVERT, B. VILLETTE, S. BASTIANI-CECCOTTI, S. TURCK-CHIÈZE, W. FOELSNER, F. DE GAUFRIDY DE DORTAN,** "Theoretical interpretation of x-rays photo-absorption in medium-Z elements plasmas measured at LULI2000 facility", *High Energy Density Phys.*, **7**, p. 320-326 (2011).

[4] **A. BAR-SHALOM, M. KLAPISCH, J. OREG,** "HULLAC, an integrated computer package for atomic processes in plasmas", *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, **71**, p. 169-188 (2001).

[5] **M. F. GU,** "The flexible atomic code", *Can. J. Phys.*, **86**, p. 675-689 (2008).

[6] **Q. PORCHEROT, J.-C. PAIN, F. GILLERON, T. BLENSKI,** "A consistent approach for mixed detailed and statistical calculation of opacities in hot plasmas", *High Energy Density Phys.*, **7**, p. 234-239 (2011).

[7] **R. D. COWAN,** *The theory of atomic structure and spectra.*, University of California Eds, Berkeley (1981).

Approche mésoscopique en détonique

Nous présentons un modèle de simulation mésoscopique s'inspirant des méthodes de particules dissipatives (« Dissipative Particle Dynamics), où les molécules sont remplacées par des mésoparticules. Chaque mésoparticule possède un degré de liberté interne représentant la dynamique interne des molécules (vibrons). Le passage d'une description atomique à une description mésoscopique permet ainsi de gagner un à deux ordres de grandeur dans la taille des systèmes simulés. La réactivité chimique des mésoparticules est introduite à l'aide d'une variable supplémentaire représentant le degré d'avancement de la réaction. Ce modèle réactif est appliqué à l'étude de la transition choc-détonation dans le nitrométhane liquide par des simulations de grande échelle. Les échantillons simulés ont une taille allant jusqu'à 15 microns.

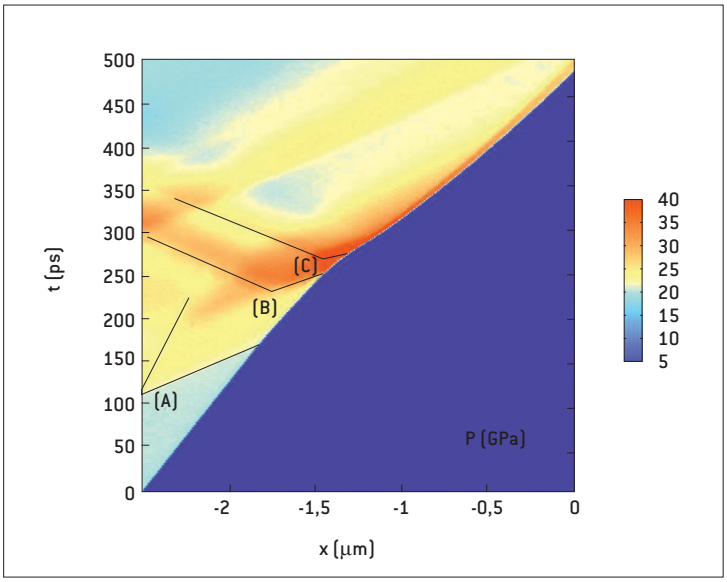
J.-B. Maillet • E. Bourasseau • N. Desbiens • CEA – DAM Île-de-France
G. Vallverdu Institut pluridisciplinaire de recherche sur l'environnement et les matériaux (IPREM), Université de Pau et des Pays de l'Adour
G. Stoltz Centre d'enseignement et de recherche en mathématiques et calcul scientifique (CERMICS), ENPC-INRIA, Marne-la-Vallée

La dynamique moléculaire est aujourd'hui une technique éprouvée pour l'étude des processus hors-équilibre, dont les ondes de chocs dans les métaux. L'étude des matériaux énergétiques, et en particulier la formation d'une onde réactive, est plus complexe car les dimensions spatiales et temporelles associées sont trop importantes pour en permettre la simulation directe. Dans ce contexte, une approche mésoscopique apparaît comme une alternative pertinente aux simulations atomistiques [1]. Ainsi, chaque molécule complexe est remplacée par une mésoparticule, et sa dynamique interne est modélisée par un seul degré de liberté (énergie interne mésoscopique). Pour les matériaux réactifs, des variables additionnelles λ_i sont introduites afin de modéliser l'avancement des réactions chimiques [2]. Leur dynamique est donnée par les lois standards de cinétique chimique.

L'application au nitrométhane se fait par le choix du potentiel d'interaction entre les mésoparticules, ajusté ici pour reproduire les propriétés thermodynamiques du nitrométhane sous choc. La décomposition chimique du nitrométhane est modélisée en deux étapes successives d'ordre 1 : la première est réversible et endothermique, la seconde irréversible et exothermique (les paramètres contrôlant la chimie sont choisis de manière à rendre compatible l'évolution chimique du système avec le temps total de simulation ; on modélise ainsi une chimie artificiellement « accélérée » par rapport au système réel).

Ce modèle mésoscopique est appliqué à l'étude du mécanisme de la transition choc-détonation dans le nitrométhane [3]. Pour ce faire, un échantillon d'environ 4,5 µm de long est créé, et des conditions aux limites périodiques sont appliquées dans les directions transverses au choc. Ces simulations sont effectuées en parallèle sur 8 000 processeurs de TERA 100, à l'aide du code Stamp du CEA/DAM. Un piston vient initier des chocs de

Figure 1.
Diagramme de marche de la pression au cours de la transition choc-détonation.



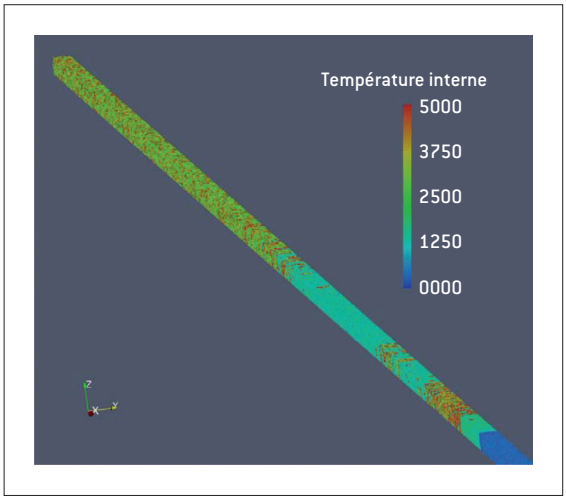
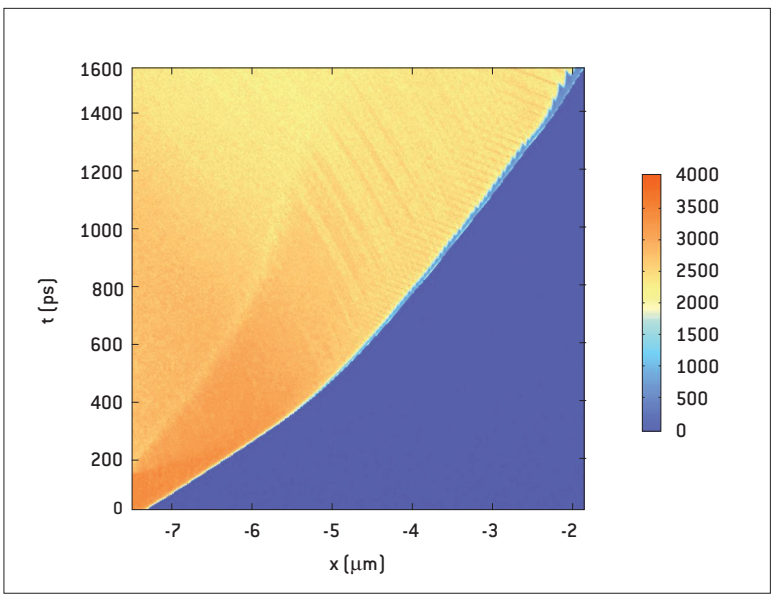


Figure 2.
Illustration de la propagation discontinue de l'onde réactive au cours de la transition choc-détonation. Les particules sont colorées en fonction de leur température interne.

différentes vitesses dans l'échantillon. Le seuil de détonation est évalué autour de 2500 m/s pour ce modèle. Pour des vitesses de piston supérieures, on observe la formation d'une onde réactive dans l'état choqué (onde dite de superdétonation), qui va rattraper l'onde de choc inerte. La **figure 1** présente le diagramme de marche de la pression. On distingue nettement la formation et la propagation du choc inerte dans le système. Après environ 100 ps, des réactions chimiques se produisent près du piston (point A). Ces réactions chimiques émettent un faisceau d'ondes de compression qui se propagent plus rapidement que l'onde réactive dans le matériau inerte choqué, et qui vont augmenter la probabilité de réaction. Ainsi on remarque un point d'allumage induit (point B), à partir duquel de nouveaux trains d'ondes sont émis vers l'avant et vers l'arrière de l'échantillon.

Figure 3. Diagramme de marche de la température du système au cours de la propagation stationnaire de l'onde réactive.



On peut éventuellement distinguer un second point d'allumage avant que l'onde réactive ne rattrape l'onde de choc (point C) pour former une onde réactive stationnaire. Ainsi, l'apparition de la détonation s'effectue par une propagation discontinue de l'onde réactive dans le milieu choqué. La **figure 2** montre une image de l'échantillon avant que l'onde réactive ne rejoigne l'onde de choc, illustrant sa propagation « par sauts ».

Enfin, nous avons étudié le comportement de l'onde réactive en conditions stationnaires sur un échantillon de 14 µm. Les réactions chimiques se développent derrière le front de choc et sont initiées par les fluctuations microscopiques du système ; ainsi, elles n'apparaissent pas systématiquement à la même distance du front de choc (ni au même endroit). Le comportement de l'onde réactive apparaît alors instable à cette échelle, émettant des impulsions de pression (et de température) vers l'arrière de matériau. La **figure 3** montre le diagramme de marche de la température du système, où l'on distingue la présence d'impulsions derrière le front réactif. Celles-ci pourraient contribuer à l'existence de la structure cellulaire de l'onde réactive, qui a été mise en évidence expérimentalement dans les gaz et les liquides.

Le développement d'un modèle mésoscopique nous a permis d'explorer les mécanismes de formation d'une onde réactive et son comportement dans des conditions stationnaires. Ces simulations permettent de mieux comprendre le lien entre certains évènements microscopiques (par exemple la probabilité de réaction chimique) et le comportement macroscopique qui peut en résulter.

RÉFÉRENCES

[1] G. STOLTZ, « A reduced model for shock and detonation waves. I. The inert case », *Europhys. Lett.*, **76**, 849 (2006).

[2] J.-B. MAILLET, L. SOULARD, G. STOLTZ, "A reduced model for shock and detonation waves. II. The reactive case", *Europhys. Lett.*, **78**, 68001 (2007).

[3] J.-B. MAILLET, E. BOURASSEAU, N. DESBIENS, G. VALLVERDU, G. STOLTZ, « Mesoscopic simulations of shock-to-detonation transition in reactive liquid high explosive», *Europhys. Lett.*, **96**, 68007 (2011).

Modélisation de la propagation de la détonation dans les explosifs condensés

L'onde de détonation et les caractéristiques propulsives d'un explosif condensé dépendent de données et processus aussi variés que l'équation d'état de l'explosif inerte, la décomposition chimique qui a lieu dans la zone de réaction, la cinétique de cette décomposition, les propriétés thermodynamiques des produits de détonation, la courbure de l'onde de détonation ou encore les interactions entre l'onde de détonation et les matériaux connexes. Des avancées récentes nous ont permis d'améliorer la modélisation des propriétés thermodynamiques des produits de détonation ainsi que celle de la propagation de l'onde de détonation dans le cas d'écoulements divergents (l'onde se propage alors avec une célérité inférieure à la vitesse théorique de Chapman-Jouguet – CJ) et convergents (célérité supérieure à la vitesse CJ).

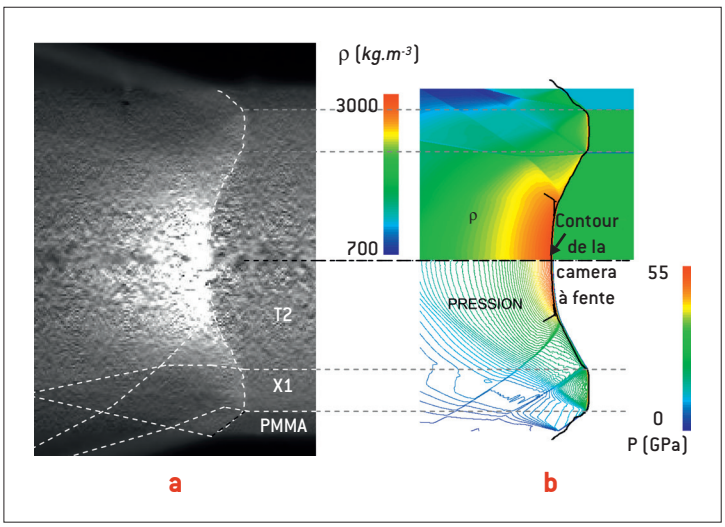
N. Desbiens • V. Dubois • C. Matignon • R. Sorin • O. Bozier CEA – DAM Île-de-France

Parmi les modèles régissant la détonation dans les explosifs condensés, la description des propriétés des produits de détonation et de la propagation de l'onde de détonation a connu des avancées notables. Concernant le pouvoir propulsif, le code de thermochimie CARTE modélise avec précision les propriétés thermodynamiques des produits de détonation. La dernière version du code a permis de reproduire avec une précision inférieure au pourcent les résultats « exacts » issus de simulations atomistiques. Pour les aspects propagation, les modèles de calcul ont été confrontés avec succès à des études expérimentales récentes de propagation d'onde de détonation convergente et de contournement d'obstacle.

Propriétés thermodynamiques des produits de détonation

Le code de thermochimie CARTE calcule la composition à l'équilibre thermodynamique d'un mélange d'espèces chimiques en minimisant l'énergie libre de Gibbs du système. Ce système est formé d'une phase fluide et d'une phase condensée qui contient du carbone sous forme d'agrégats de taille micrométrique. La phase condensée est traitée par une équation d'état analytique qui permet de reproduire les propriétés de cette population d'agrégats. L'énergie libre de la phase fluide, constituée de molécules simples telles que N_2, CO_2, H_2O, CO, NO,... est déterminée en assemblant différentes briques de calcul. Parmi celles-ci, la brique de calcul des propriétés thermodynamiques d'excès a récemment été modifiée. Une nouvelle méthode KLRR (Kang-Lee-Ree-Ree) publiée en 2006 a été confrontée à une base de données de résultats « exacts » issus de simulations atomistiques [1,2]. Ces travaux ont montré que, dans la gamme thermodynamique d'intérêt, l'écart relatif moyen entre la méthode KLRR et les simulations atomistiques est d'environ 0,7%, soit un écart trois fois plus faible qu'avec la méthode précédemment utilisée. De la même manière, la brique de calcul du fluide effectif qui mime le mélange d'espèces a été réexaminée. Un ensemble représentatif de mélanges binaires et ternaires a été étudié par simulations atomistiques. Les résultats de ces calculs ont servi de base de données pour la construction d'une nouvelle loi de calcul du fluide effectif (VdW-6p) [1]. La combinaison de la méthode KLRR et de la loi VdW-6p pour le fluide effectif permet au code CARTE de reproduire des calculs atomistiques de points CJ d'explosifs-modèles avec un écart inférieur à 0,25%. Afin de restituer les propriétés thermodynamiques d'explosifs variés, les paramètres restés libres ont été fixés par une procédure de calibration, dont les détails ont été publiés récemment [3]. On reproduit ainsi avec une grande précision les caractéristiques CJ d'explosifs variés [1].

Figure 1. Propagation d'une détonation convergente à vitesse constante (supérieure à D_{CJ}). (**a**) : reconstruction tomographique de la radio expérimentale – (**b**) : cartes de pression et densité issues de la simulation



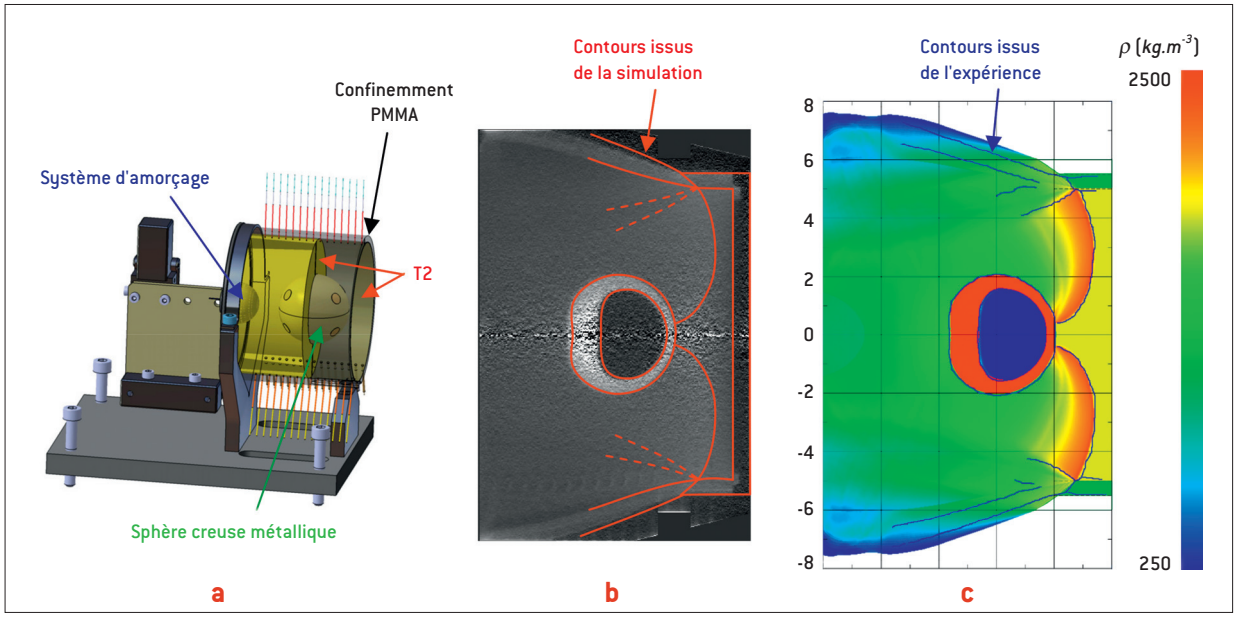


Figure 2. Propagation d'une détonation autour d'un obstacle sphérique.
(**a**) : montage expérimental – (**b**) : reconstruction tomographique de la radio expérimentale – (**c**): carte de densité issue de la simulation.

Propagation d'onde de détonation convergente

La célérité de détonation théorique D_{CJ} correspond à la vitesse de propagation d'un front plan stationnaire. Dans la réalité, la détonation se propage à une vitesse inférieure ou supérieure à D_{CJ} selon que le front est divergent ou convergent. C'est la compétition entre la vitesse de décomposition de l'explosif (réactions chimiques) et l'expansion de l'explosif qui détermine la vitesse de propagation. Un modèle basé sur les travaux de Wescott et Stewart a été développé pour modéliser l'ensemble de ces phénomènes [4]. L'équation d'état réactive de l'explosif est composée d'un mélange idéal d'une phase non brûlée qui reproduit les courbes d'Hugoniot de l'explosif inerte et d'une phase complètement réagie prédite par le code CARTE. Le taux de décomposition de l'explosif est ensuite calibré pour reproduire des expériences simples telles que profondeurs d'amorçages ou vitesses en cartouche. Ce modèle a ensuite été testé en dehors de son domaine de calibration sur deux expériences. La première consistait à imposer un régime convergent stationnaire à une onde de détonation. Un front de détonation dans un cylindre d'explosif lent était forcé par la détonation plus rapide d'un cylindre d'explosif extérieur (figure 1). La seconde servait à tester le modèle dans une situation complexe : une détonation sphérique divergente impacte puis contourne un obstacle sphérique, et enfin converge en un point derrière l'obstacle en accélérant par convergence (figure 2). Le modèle permet de rendre compte précisément de la chronométrie et des systèmes d'ondes de compression et de détente générées par explosion.

Conclusion

La prédiction de l'équation d'état des produits de détonation couplée à un modèle de décomposition de l'explosif calibré sur un nombre minimal d'expériences élémentaires permet désormais de rendre compte de situations allant de l'amorçage par choc fort aux interactions complexes d'ondes en écoulement divergent ou convergent.

RÉFÉRENCES

[1] **N. DESBIENS, V. DUBOIS, C. MATIGNON, R. SORIN,** « Improvements of the CARTE thermochemical code dedicated to the computation of properties of explosives », *J. Phys. Chem. B*, **115**, 12868 (2011).

[2] **E. BOURASSEAU, J.-B. MAILLET, N. DESBIENS, G. STOLTZ,** « Microscopic calculations of Hugoniot curves of neat triaminotrinitrobenzene (TATB) and of its detonation products », *J. Phys. Chem. A*, **115**, 10729 (2011).

[3] **V. DUBOIS, N. DESBIENS, E. AUROUX,** « New developments of the CARTE thermochemical code: Calculation of detonation properties of high explosives », *Chem. Phys. Lett.*, **494**, p. 306-311 (2010).

[4] **C. MATIGNON, R. SORIN, O. BOZIER,** « Detonation propagation of converging front in IHE: comparison of direct numerical simulation and detonation shock dynamics against experimental data», *Proc. 10th Int. Symposium on Detonation*, April 11-16, 2010, Coeur d'Alene Resort, Idaho, p. 1182-1190 (2010).

Comprendre le diagramme de phase complexe de l'uranium : le rôle du couplage électron-phonon

Dans l'uranium, il existe des anomalies de phonons remarquables dans la direction [100]. À basse température, ces anomalies sont responsables d'une transition de phase vers une structure plus complexe. Cette transition est décrite comme une onde de densité de charge (ODC). L'uranium est le seul élément découvert à ce jour qui présente une telle transition de phase à pression ambiante. En fonction de la pression l'ODC disparaît, et, à la même pression, la température supraconductrice atteint un maximum de 2 K, puis diminue avec la pression. Pour expliquer cette interaction entre ODC et supraconductivité, nous avons effectué des calculs couplés à des expériences de diffusion inélastique des rayons X à l'European Synchrotron Radiation Facility (ESRF). Nous avons notamment mis en évidence l'importance du couplage électron-phonon pour expliquer ce phénomène.

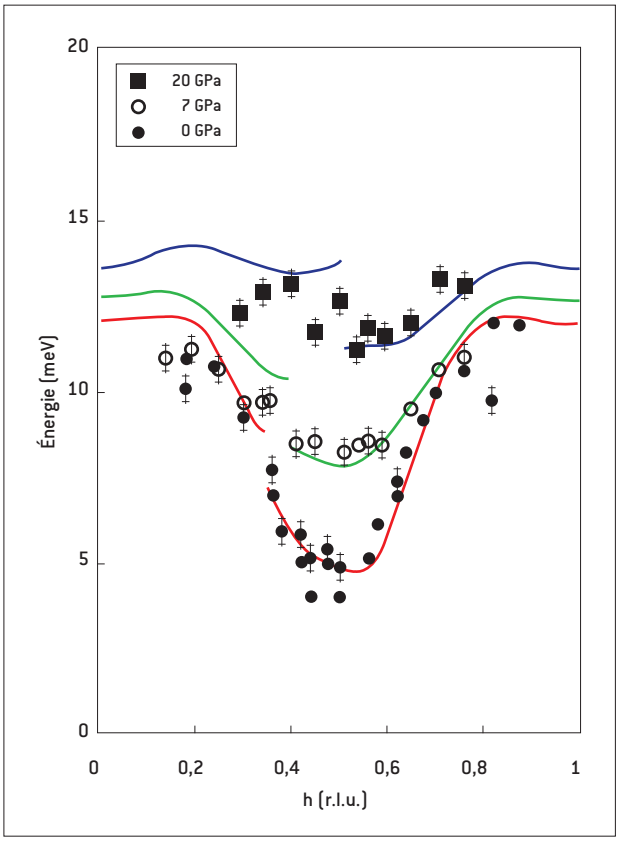
J. Bouchet CEA – DAM Île-de-France
S. Raymond CEA – DSM, Institut nanosciences et cryogénie (INAC), Grenoble
G. H. Lander Institute for Transuranium Elements, Karlsruhe, Allemagne

La compétition entre plusieurs états fondamentaux est une question centrale en physique de la matière condensée comme, par exemple, la compétition entre supraconductivité et magnétisme dans les cuprates, les pnictides de fer ou les fermions lourds. Tout aussi importante est celle entre onde de densité de charge (ODC) et supraconductivité. Nous avons employé la diffusion inélastique des rayons X (IXS) et les calculs *ab initio* pour étudier les mécanismes qui régissent une telle interaction dans l'uranium.

L'uranium cristallise à température ambiante dans une structure orthorhombique (phase α-U), unique pour un élément à pression ambiante. Une transition de phase vers un état ODC se produit en dessous de 43 K, et ce comportement a été attribué à un emboîtement (*nesting*) de certaines parties de la surface de Fermi. L'état ODC (appelé α_1-U) peut être considéré, en première approximation, comme un doublement de l'axe *a* de la maille. Sous pression, l'ODC disparaît à environ 1,5 GPa tandis que la supraconductivité présente une température de transition maximale (T_c) d'environ 2 K [1].

L'aspect clé qui stabilise la faible symétrie de la structure α-U, est l'étroite bande contenant environ trois électrons 5f au niveau de Fermi. Grâce à un traitement adéquat de ces électrons, le spectre de phonons de α-U n'a été reproduit qu'en 2008 par des calculs *ab initio* [2], près de 30 ans après sa détermination expérimentale. Une prédiction de ce calcul est que, sous pression, l'énergie du mode mou Σ_4 dans la direction [100] augmente brutalement jusqu'à ce que l'anomalie disparaisse vers 20 GPa.

Figure 1.
Mesure (symboles) et calcul (lignes) du mode de phonon mou Σ_4 dans α-U pour différentes pressions. *h* indique la direction [100] de propagation du phonon.



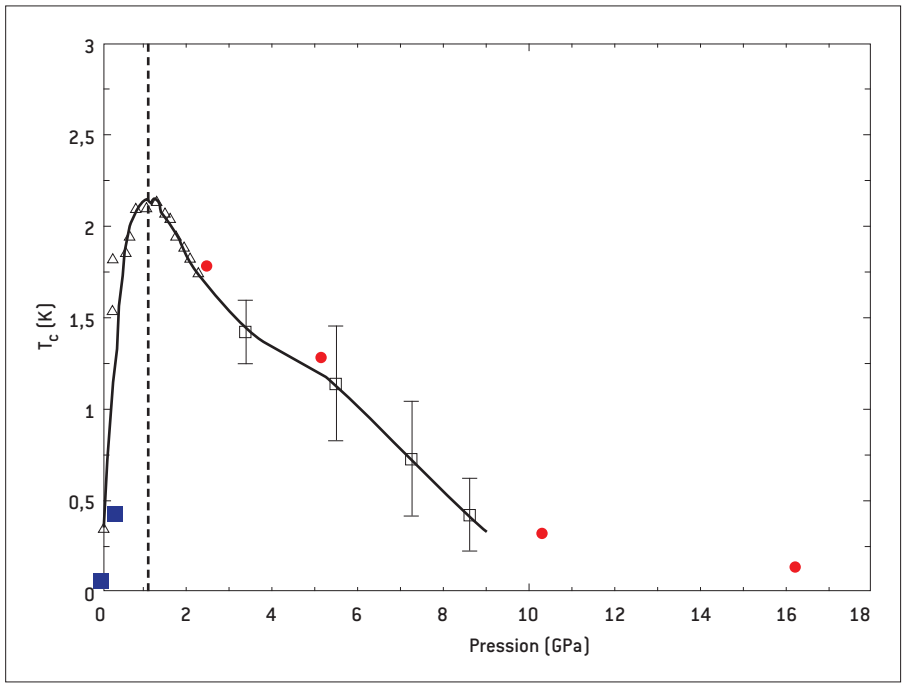


Figure 2.
Diagramme de phase T-P de l'uranium dans la région supraconductrice. La ligne verticale en pointillé indique la transition théorique entre les phases α_1-U et $\tilde{\alpha}$ U. Les symboles ouverts (pleins) sont les données expérimentales (théoriques).

Afin de valider cette prédiction théorique nous avons effectué une expérience IXS sur la ligne ID28 de l'ESRF sur un échantillon monocristallin, placé dans une cellule à enclume de diamant [3]. La figure 1 montre une comparaison entre les résultats IXS expérimentaux et théoriques. Ces résultats établissent clairement la disparition du mode mou avec la pression.

Cet excellent accord entre théorie et expérience nous a amenés à étudier plus avant le diagramme de phase. Nos études théoriques montrent que la surface de Fermi, et par conséquent les conditions du *nesting*, n'évolue que très peu avec la pression. En revanche, nous avons constaté que le couplage électron-phonon (e^--ph) est très sensible au vecteur d'onde, et qu'il atteint un maximum au niveau du mode mou. Ce maximum est cependant rapidement supprimé lorsque la pression augmente. Ainsi, le couplage e^--ph est l'ingrédient essentiel pour la formation et la disparition de l'état ODC et la structure α-U. Le *nesting* est bien présent, mais, bien que nécessaire, ce n'est pas l'ingrédient unique.

Ce jeu fascinant entre ODC et supraconductivité sous pression a également été étudié théoriquement. Pour une supraconductivité due aux phonons, la connaissance du couplage e^--ph permet la détermination de T_c. Nos calculs montrent que le couplage e^--ph augmente dans la phase ODC jusqu'à ce que la structure devienne instable, soit juste au-dessus de 1 GPa (voir ligne en pointillé de la figure 2). En revanche, à des pressions plus élevées le couplage e^--ph diminue dans la phase α. Ainsi, la forme du « dôme » de la région supraconductrice est expliquée par la dépendance en pression du couplage e^--ph, en parallèle avec la stabilité respective des phases α_1-U et α-U. La figure 2 montre le bon accord entre les températures mesurées et calculées en fonction de la pression.

Notre mesure de phonons dans l'uranium nous a permis de confirmer la prédiction théorique sur la disparition du mode mou en pression. Une étude approfondie des mécanismes en jeu met l'accent sur le rôle central du couplage e^--ph dans la détermination du diagramme de phase complexe de l'uranium, y compris l'OCP et la supraconductivité, tandis que le *nesting* de la surface de Fermi est indépendant de la pression.

RÉFÉRENCES

[1] **G. H. LANDER, E. S. FISHER, S. D. BADER,** « The solid-state properties of uranium : A historical perspective and review", *Adv. Phys.*, **43**, p. 1-111 (1994).

[2] **J. BOUCHET,** "Lattice dynamics of α uranium", *Phys. Rev. B*, ***77***, 024113 (2008).

[3] **S. RAYMOND, J. BOUCHET, G.H. LANDER, M. LE TACON, G. GABARINO, M. HOESCH, J.-P. RUEFF, M. KRISCH, J. C. LASHLEY, R. K. SCHULZE, R. C. ALBERS,** "Understanding the complex phase diagram of Uranium: the role of the electron-phonon coupling", *Phys. Rev. Lett.*, **107**, 136401 (2011).

Des multiprocesseurs pour des réponses multipolaires

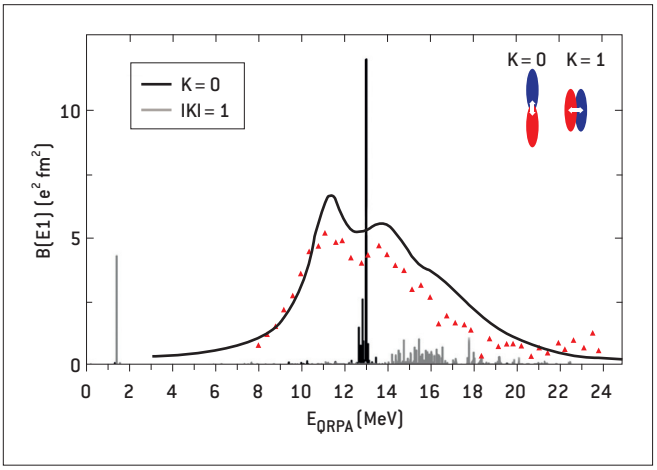
Pour la première fois, un calcul complètement microscopique a permis de prédire les réponses multipolaires de l'uranium 238, noyau lourd et déformé. Cette étude effectuée avec l'approche QRPA en symétrie axiale illustre les progrès de la structure nucléaire théorique grâce à l'utilisation optimale des nouveaux moyens de calcul. Elle ouvre la voie vers des études systématiques attendues dans les domaines tels que l'astrophysique nucléaire.

S. Péru • G. Gosselin • M. Martini • M. Dupuis • S. Hilaire CEA – DAM Île-de-France

Le noyau est un fluide quantique composé de N nucléons dont on peut décrire les propriétés grâce à des approches plus ou moins universelles. À ce jour, l'approximation du champ moyen – qui consiste à traiter le problème à N corps en considérant chaque nucléon comme une particule indépendante soumise à un potentiel moyen généré par tous les autres nucléons du noyau – est l'approche traditionnellement utilisée au CEA/DAM puisqu'elle permet de décrire tous les noyaux de la nature dans leur état fondamental à partir d'une interaction effective unique : la force de Gogny. Le traitement des états excités, en particulier collectifs (pour lesquels une grande partie des nucléons contribue), nécessite d'étendre cette approche. Une extension naturelle, la *Random Phase Approximation* (RPA), permet de décrire les excitations collectives du noyau comme des états cohérents d'excitations particule-trou. États excités de haute et de basse énergie, collectifs aussi bien qu'individuels, sont alors décrits par le même formalisme avec la même précision. À la DAM, un code de calcul RPA a été développé dans les années soixante-dix ; il était toutefois limité à la symétrie sphérique sans prise en compte de l'appariement en raison des capacités informatiques limitées de l'époque, et ne pouvait donc s'appliquer qu'aux noyaux doublement magiques.

Avec le développement considérable qu'ont connu les moyens de calcul ces dernières années, l'extension de cette approche à la symétrie axiale est devenue réalisable ainsi que l'extension du formalisme pour les noyaux avec appariement. Cette dernière se nomme QRPA, pour Quasiparticule-RPA, où la quasiparticule est l'objet mathématique à la fois particule et trou particulièrement bien adapté au traitement des corrélations de paires. Un code de calcul QRPA séquentiel, en symétrie axiale, a donc été développé et a permis une étude théorique des résonances géantes dans les isotopes du magnésium et du silicium [1]. Celle-ci a montré l'importance de la déformation intrinsèque du noyau tout en validant l'outil numérique, qui toutefois ne pouvait être utilisé pour des noyaux plus lourds car le temps de calcul et la mémoire disponible demeuraient des facteurs limitatifs. Le code de calcul QRPA axiale a donc été étendu pour exploiter pleinement les possibilités offertes par les ordinateurs parallèles. Le challenge était de pouvoir remplir, dans un délai raisonnable, une super matrice non symétrique, dont la taille croît exponentiellement avec le nombre de nucléons du noyau considéré, et dont le temps de calcul de chaque élément augmente dans les mêmes proportions. Le bon côté de cette homothétie du temps de calcul avec la taille du noyau est une modularité quasi infinie du problème. Une stratégie a donc été mise en place pour calculer en parallèle plusieurs éléments de matrice :

Figure 1.
Réponse dipolaire $J = 1$ théorique (noir et gris) et expérimentale (rouge) de l'^{238}U. La courbe pleine est une convolution de la réponse théorique décalée de 2 MeV vers les basses énergies.



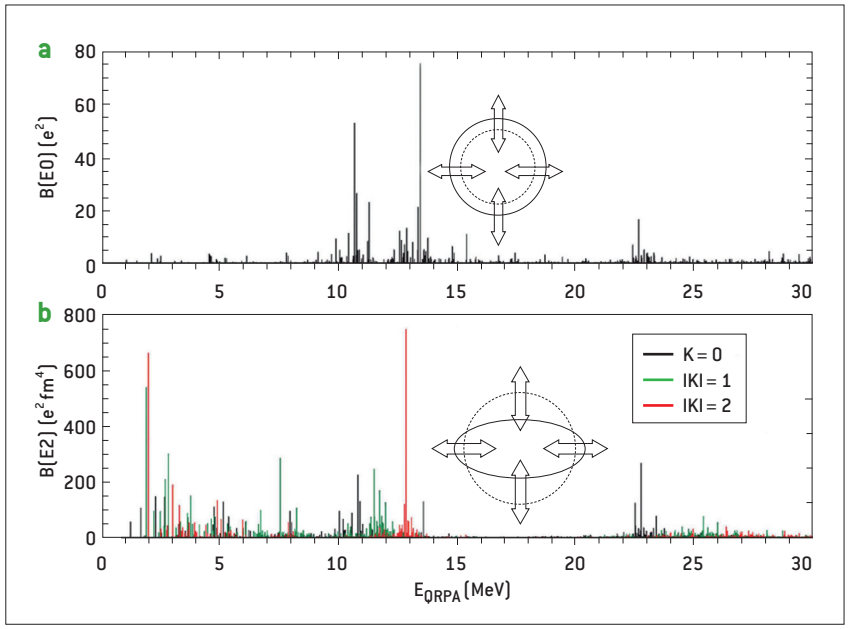


Figure 2.
Réponses monopolaire $J = 0$ (**a**) et quadripolaire $J = 2$ (**b**) de l'^{238}U calculées pour les différentes projections K du moment angulaire J.

une procédure maitre-esclave permet de distribuer le calcul sur un nombre ajustable de processeurs. Le gain en temps de calcul s'est avéré rigoureusement proportionnel au nombre de processeurs actifs. La diagonalisation de la super matrice utilisant des procédures elles aussi parallèles fournit ensuite les fonctions d'ondes théoriques des états excités ainsi que les fonctions de réponse multipolaires du noyau.

Pour la première fois, les excitations multipolaires de l'^{238}U ont ainsi pu être prédites de façon totalement microscopique et cohérente [2]. La réponse dipolaire (**figure 1**), oscillation cohérente des protons en opposition de phase avec les neutrons, se scinde en deux composantes, signature de la déformation intrinsèque du noyau. Le résultat théorique reproduit, à un décalage près, les données expérimentales issues de la photoabsorption. Pour la réponse monopolaire, associée aux modes de respiration (**figure 2a**), les énergies des états résonants sont en accord avec les valeurs expérimentales de diffusion de particules α et d'électrons. Le spectre d'excitation quadripolaire (**figure 2b**) de basse énergie se révèle lui aussi comparable à l'expérience. Enfin, la réponse octupolaire permet d'identifier la position du premier état $K^{\pi} = 3^{-}$, qui existe mais dont la probabilité de transition est trop faible pour être observée. Pout toutes les multipolarités, la hiérarchie en énergie des différentes projections du moment angulaire sur l'axe de symétrie [1] est vérifiée pour ce noyau.

Les réponses multipolaires ainsi obtenues pourront enrichir les calculs microscopiques de réactions nucléaires, comme l'ont montré les études de pré-équilibre à partir de solutions RPA [3]. En plus de permettre un traitement de qualité des noyaux lourds déformés, ce nouvel « outil parallèle », quasi unique (seulement deux autres approches, publiées depuis, peuvent prétendre lui faire concurrence) ouvre une nouvelle ère des études de structure : il autorise les physiciens à envisager des calculs systématiques permettant des analyses de phénomènes nucléaires ayant un impact en astrophysique.

RÉFÉRENCES

[1] **S. PÉRU, H. GOUTTE,** "Role of deformation on giant resonances within the quasiparticle random-phase approximation and the Gogny force", *Phys. Rev. C*, **77**, 044313 (2008).

[2] **S. PÉRU, G. GOSSELIN, M. MARTINI, M. DUPUIS, S. HILAIRE, J.-C. DEVAUX,** "Giant resonances in ^{238}U within the quasiparticle random-phase approximation with the Gogny force", *Phys. Rev. C*, **83**, 014314 (2011).

[3] **M. DUPUIS, T. KAWANO, J.-P. DELAROCHE, E. BAUGE,** "Microscopic model approach to (n,xn) pre-equilibrium reactions for medium-energy neutrons", *Phys. Rev. C*, **83**, 014602 (2011).

Un nouveau type de cible active d'actinide pour les études de la fission et de réactions (n,xn)

Un nouveau type de cible active pour la détection de la fission a été mis au point à partir de la technique de spectrométrie α par scintillation liquide. Celle-ci consiste à mettre en solution un actinide dans un scintillateur organique liquide. Ainsi, l'isotope à étudier est directement dans le volume actif du détecteur. Une telle cible permet d'obtenir des comptages très précis de la fission et des décroissances α, et également d'avoir un veto fission extrêmement efficace pour supprimer les événements de fission. Ceci en fait un détecteur très intéressant pour l'étude de la fission, mais aussi des réactions (n,xn).

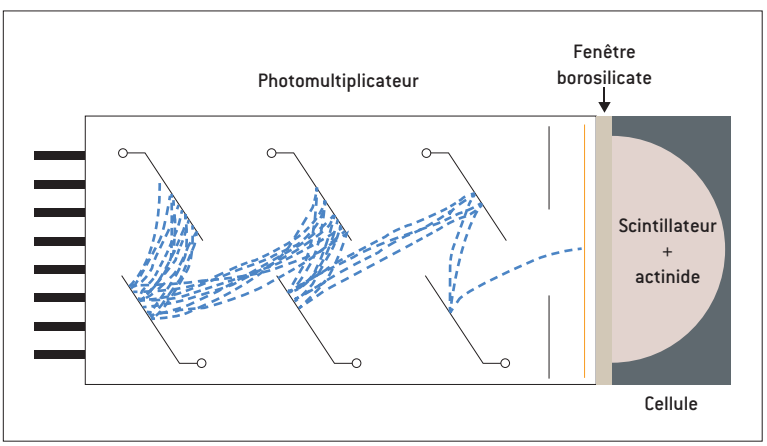
G. Bélier • J. Aupiais • C. Varignon • S. Vayre CEA – DAM Île-de-France

Dans le domaine des données nucléaires et particulièrement pour la fission, les cibles d'actinide sont un élément clé car il faut disposer de dépôts minces et uniformes pour pouvoir détecter les fragments de fission. La cible active présentée ici contourne ce problème en tirant profit de la technique d'extraction liquide-liquide. Déjà très utilisée en spectrométrie α, elle permet de mettre l'actinide en solution dans un scintillateur organique liquide. Parmi les nombreux avantages de cette solution, on peut citer la facilité de mise en œuvre, les hautes concentrations envisageables (jusqu'à 100 mg/mL), la possibilité de faire de l'identification de particule par analyse de la forme temporelle du signal de fluorescence ou encore la rapidité de ce dernier. Un avantage décisif tient à ce que l'actinide est en solution dans le volume actif du détecteur. Or, les fragments de fission ont des parcours très faibles, typiquement inférieurs à 50 µm. Toute matière présente entre le point d'émission d'un fragment et le détecteur constitue une zone morte, qui conduit à des pertes de comptages et de résolution en énergie. Dans le cas présent ce phénomène de « fenêtre » est absent et la perturbation de la détection est minimale.

L'étude a conduit à la mise au point d'un scintillateur [1] et d'un montage permettant son utilisation dans une expérience de physique nucléaire (figure 1). Ce dernier est composé d'une cellule hémisphérique, dont la paroi interne est couverte d'une peinture réfléchissante, fermée par un hublot en borosilicate, et couplée à l'aide d'une graisse optique à un photomultiplicateur Hamamatsu.

Un des grands avantages des scintillateurs organiques est qu'ils permettent de faire une identification de particules. En effet, les temps caractéristiques de transfert de l'énergie déposée dans le solvant vers la molécule scintillante dépendent du type de dépôt d'énergie (excitation conduisant à une fluorescence instantanée ou ionisation conduisant à une fluorescence retardée). Finalement, plus la particule est lourde, plus la fluorescence retardée, ou lente, est marquée. L'analyse consiste à déterminer le rapport des charges des composantes rapide et lente du signal de photomultiplicateur. La figure 2 présente un histogramme d'identification à deux dimensions, avec en abscisse la charge totale du signal, et en ordonnée le rapport de la charge lente sur la charge rapide. Cet exemple a été obtenu en mettant en solution 5 kBq de ^{252}Cf et

Figure 1. Schéma d'un montage scintillateur-photomultiplicateur.



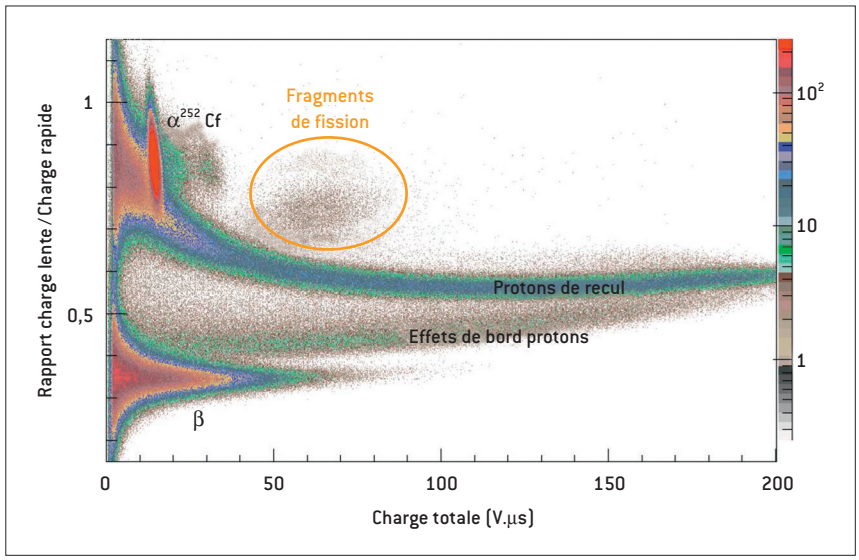


Figure 2.
Histogramme à 2 dimensions obtenu à partir de la charge totale du signal et du rapport charge lente/charge rapide. L'histogramme a été obtenu sous irradiations avec des neutrons de 18 MeV, et du ^{252}Cf mis en solution dans le scintillateur. L'axe z représente le nombre de coups.

sous irradiation de neutrons de 18 MeV. Cet isotope permet d'avoir des émissions α (97%), de la fission spontanée (3%) et également des décroissances β. Les neutrons, quant à eux, induisent des protons de recul. L'histogramme présente clairement ces quatre types d'événements. Les particules β sont les moins ionisantes et apparaissent aux rapports les plus faibles. Le pic α à 6,118 MeV du ^{252}Cf apparaît comme attendu à des rapports plus élevés. Par contre, et c'est un résultat surprenant, les fragments apparaissent à des rapports intermédiaires. Ainsi, ils sont proches des protons qui se présentent sous forme de « banane » (leur énergie variant de 0 à 18 MeV). Pour ce qui est de la réponse en énergie, le fait que le transfert d'énergie solvant-scintillateur dépende du type de particule conduit à une très forte non-linéarité en fonction de la masse de la particule. Le rapport du rendement en lumière entre les particules β et les particules α est de 8. Ce travail a permis de montrer qu'entre les particules α et les fragments de fission ce rapport est de l'ordre de 10 [1].

Des simulations Monte-Carlo réalisées à l'aide du code MCNPX2.6 ont permis de quantifier les pertes de comptages fission et α pour ce type de détecteur. La figure 3 présente une simulation du spectre de l'énergie déposée dans le scintillateur lors d'une fission du ^{252}Cf, pour une géométrie sphérique de volume 1 mL. Les événements les plus probables correspondent au pic de dépôt total d'énergie à 188 MeV. Celui-ci a été tronqué pour pouvoir visualiser les événements avec dépôt partiel d'énergie. En dessous de ce pic, le spectre présente trois composantes qui définissent trois régions, selon que deux ou seulement un fragment (lourd ou léger) sortent du scintillateur. Avec un seuil de détection à 90 MeV, la proportion des pertes de comptages est de $2{,}2.10^{-7}$. L'étude a permis de montrer que quelque soit la géométrie utilisée, un rayon de 1 mm pour casser les angles vifs permettait d'atteindre les performances de la géométrie sphérique.

La cible active présentée dans cet article offre de nombreux avantages. L'un des plus importants est la quasi-absence de perte de comptage en fissions et en α. La cible peut donc être utilisée en veto fission super efficace dans des mesures où la fission représente un polluant. C'est le cas pour des mesures de sections efficaces de réaction (n,xn) sur les actinides. Inversement, des comptages fissions et α très précis peuvent être réalisés dans le cadre de mesures de sections efficaces de fission ou de rendements de produits de fission. En outre, le scintillateur organique utilisé permet d'utiliser la cible comme moniteur de flux de neutrons, et ainsi d'éliminer les incertitudes liées à l'utilisation d'un deuxième détecteur.

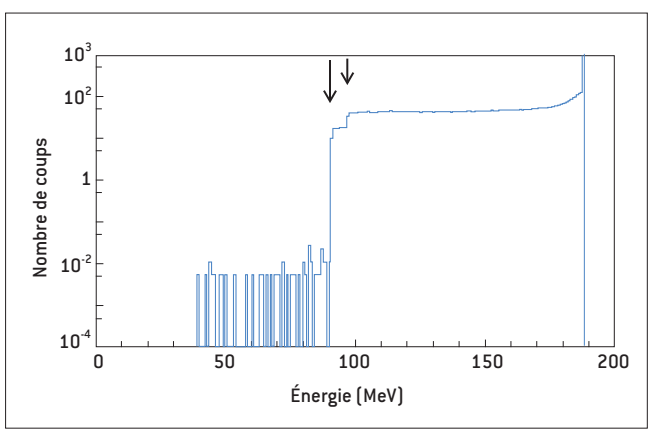


Figure 3.
Spectre de dépôt d'énergie dans la fission du ^{252}Cf simulé.

RÉFÉRENCES

[1] **G. BÉLIER, J. AUPIAIS, C. VARIGNON, S. VAYRE,** "Characterization and development of an active scintillating target for nuclear reaction studies on actinides", *Nuclear Instruments and Methods*, **A664** p. 341-346 (2011).

À l'écoute de sources explosives accidentelles : observation et interprétation de signaux inattendus

L'analyse des signaux infrasons produits par les explosions accidentelles des dépôts de munition de Gerdec et de Chelopechene montre l'importance de structures atmosphériques de petite échelle sur la propagation. Les ondes de gravité, non décrites par les modèles d'atmosphère actuels, induisent des fluctuations des champs horizontaux de vents influant sur la propagation des ondes dans la stratosphère et mésosphère. Cette étude quantifie les effets des petites perturbations des modèles de vent sur la durée et l'amplitude des signaux enregistrés, en contribuant ainsi à améliorer nos outils de simulation de la propagation et de caractérisation de sources explosives. Ce travail profite aussi au développement de méthodes plus réalistes d'estimation des capacités de détection du Système de surveillance international (SSI) pour la vérification du Traité d'interdiction complète des essais nucléaires (TICE).

J. Vergoz • A. Le Pichon CEA – DAM ile-de-France
D. Green AWE Blacknest, Brimpton, Reading, Royaume-Uni

Jusqu'à des distances de plusieurs milliers de kilomètres, les vents stratosphériques (vers 50 km d'altitude) contrôlent au premier ordre l'efficacité de la propagation des ondes infrasonores: les capacités de détection des stations situées dans la direction de ces vents sont fortement améliorées par rapport à celles situées contre ces vents [1]. Pourtant, modéliser avec précision les caractéristiques des arrivées des infrasons (temps d'arrivée, durées, amplitudes) reste encore un vrai challenge.

L'imprévisibilité des signaux infrasons est souvent attribuée à la résolution insuffisante, à la fois en espace et en temps, des spécifications météorologiques utilisées pour la modélisation de la propagation. Par exemple, les ondes de gravité ne sont pas présentes dans ces modèles : ces ondes atmosphériques, qui résultent de déplacements adiabatiques de volumes d'air dans la troposphère (altitudes < 10 km), perturbent le milieu de propagation. Ces oscillations du milieu ajoutent une composante horizontale de petite échelle sur les vents (de l'ordre de 10-20 m/s à 50 km d'altitude), pouvant modifier significativement les trajets prédits des ondes [2].

Dans des conditions de forts vents stratosphériques, le retour au sol de l'énergie acoustique peut être expliqué uniquement par réfraction, grâce au fort gradient de la vitesse du son dans la stratopause; les perturbations engendrées par les ondes de gravité ont alors une influence négligeable sur la propagation. L'analyse des signaux infrasons générés par l'explosion du dépôt pétrolier de Buncefield au Royaume-Uni en 2005 en est un bon exemple : les spécifications atmosphériques couplées à des codes de tracé de rayon modélisant uniquement la réfraction sont suffisantes pour expliquer les arrivées aux différentes stations [3].

En revanche, lorsque ces courants sont moins forts ou plus instables, ces mêmes méthodes d'analyse peuvent échouer pour expliquer les arrivées observées : c'est le cas de deux séries de fortes explosions accidentelles de dépôts de munitions qui se sont produites le 15 Mars 2008 à Gerdec en Albanie, et le 3 Juillet 2008 à Chelopechene, en Bulgarie.

Interprétation de signaux inattendus

Ces deux séries d'explosions sont pour la communauté scientifique des évènements particulièrement intéressants pour valider des modèles de propagation et d'atmosphère car leurs localisations spatiales et temporelles sont bien contraintes par des données médiatiques, sismiques et satel-

Figure 1. En 2008, 11 stations infrasons opérationnelles en Europe, Afrique du Nord et Asie occidentale ont enregistré les explosions de Gerdec et de Chelopechene. Quatre de ces stations appartiennent au SSI. Les autres sont des stations nationales, installées principalement pour des études dans le domaine des sciences de l'atmosphère.

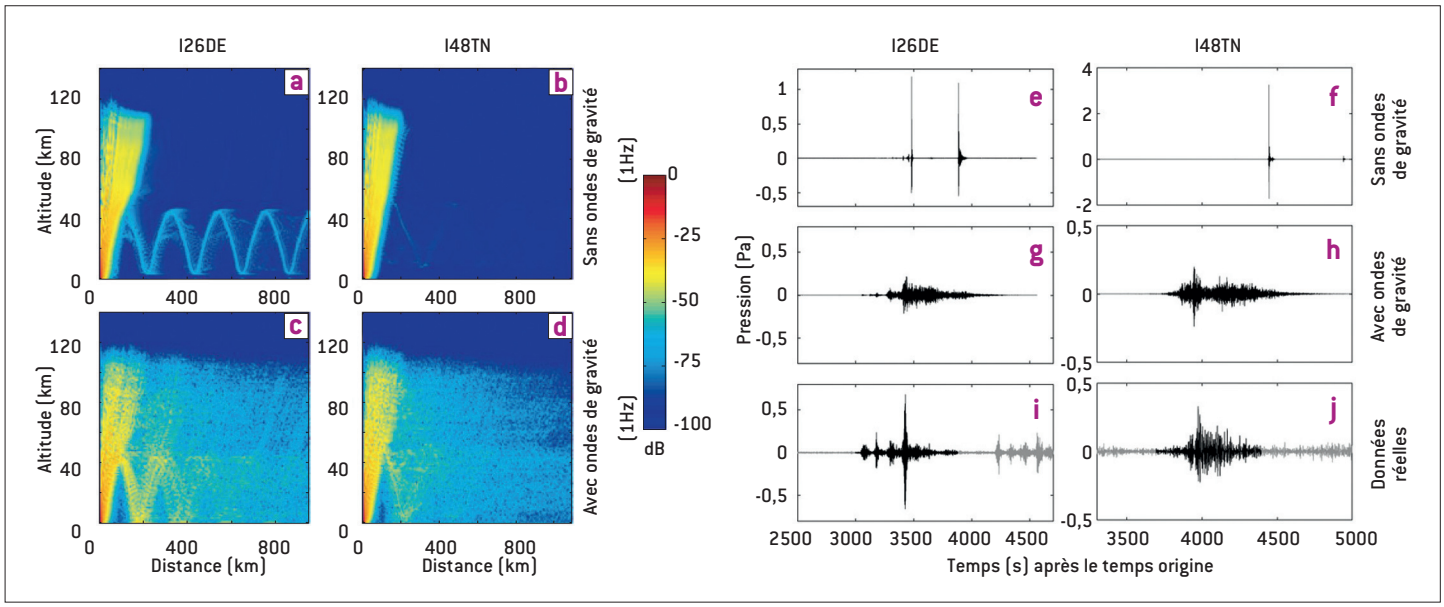


Figure 2. Modélisation de la propagation et simulation des formes d'ondes. À gauche : représentation des trajets suivis par l'énergie acoustique à 1 Hz pour l'explosion de Gerdec, en direction des stations IS26 (Allemagne) et IS48 (Tunisie). Les calculs ont été réalisés avec un code parabolique, avec (**c-d**) et sans (**a-b**) les perturbations liées aux ondes de gravité. La couleur code l'atténuation en décibels relativement à une distance de référence située à 1 km de la source. À droite : représentation des formes d'ondes reconstituées à partir de plusieurs simulations à des fréquences différentes, en supposant une source explosive de 1 kilotonne équivalent TNT avec (**g-h**) et sans (**e-f**) ondes de gravité. Ces signaux synthétiques sont comparés aux signaux réels (**i-j**).

litaires. Les explosions de Gerdec ont été détectées par 6 stations, jusqu'à 4 900 km par la station russe IS46 du SSI (**figure 1**) dans la direction des vents stratosphériques qui soufflent modérément vers l'est en cette saison. De manière inattendue, des arrivées ayant des caractéristiques d'ondes stratosphériques ont été enregistrées sur 4 stations à l'ouest de l'évènement (IS26, IS48, IGADE, DIA), direction dans laquelle aucun guide stratosphérique n'existe d'après les spécifications atmosphériques.

Pour expliquer ces arrivées, des simulations TDPE (Time Domain Parabolic Equation) incluant la diffraction et la dispersion ont permis de synthétiser des formes d'onde par sommation fréquentielle [4]. Les résultats de ces simulations, en incluant ou non les perturbations induites par un modèle statistique d'ondes de gravité, sont montrés sur la **figure 2**. Le long du trajet vers la station IS26, l'énergie est renvoyée vers la surface du sol par combinaison de réfractions dues aux augmentations des vitesses du son avec l'altitude et aux réflexions partielles sur des structures fines générées par les perturbations d'onde de gravité. Même si les enveloppes des formes d'onde simulées et observées ne correspondent pas parfaitement, cette modélisation permet d'expliquer des arrivées à grande distance de la source, là où les méthodes de simulation classique échouent. Les arrivées associées aux explosions de Chelopechene montrent des caractéristiques de signaux similaires à celles identifiées sur trajet Gerdec-IS26 avec un grand nombre d'arrivées impulsives expliquées par de multiples trajets malgré un faible guide stratosphérique.

Discussion et conclusion

La simulation numérique montre que les codes de tracé de rayons ne sont pas suffisamment précis pour simuler les effets des deux explosions de Gerdec et Chelopechene. La diffraction et la dispersion, prises en compte dans des codes de propagation plus élaborés, sont clairement des mécanismes efficaces pour propager l'énergie acoustique le long de trajets où les gradients de température et des vents ne génèrent pas de retour d'ondes vers le sol. Les fluctuations de vent causées par des structures atmosphériques de petites échelles, telles que les ondes de gravité, jouent ici un rôle prédominant sur la propagation et l'estimation des performances d'un réseau de surveillance par infrason [5].

La poursuite de ces études devient un enjeu majeur dans le cadre du TICE pour affiner nos capacités de modélisation et d'interprétation des signaux générés par des sources d'intérêt. Les retombées de ce travail sont aussi importantes pour améliorer le paramétrage des modèles de circulation générale de l'atmosphère, notamment dans le cadre du projet Européen 2012-2015 Atmospheric dynamics Research InfraStructure in Europe (ARISE) dont le CEA est coordinateur.

REFERENCES

[1] **A. LE PICHON, E. BLANC, J. VERGOZ,** « Infrasons dans l'atmosphère », *chocs*, Revue scientifique et technique de la Direction des applications militaires du CEA, **26**, p. 19-38 (2002).

[2] **S.N. KULICHKOV, I.P. CHUNCHUZOV, O.I. POPOV,** « Simulating the influence of an atmospheric fine inhomogeneous structure on long-range propagation of pulsed acoustic signals", *Izv., Atmos. Ocean. Phys.*, **46**(1), p. 60-68 (2010).

[3] **L. CERANNA, A. LE PICHON, D.N. GREEN, P. MIALLE,** "The Buncefield Explosion: a benchmark for infrasound analysis across central Europe", *Geophys. J. Int.*, **177**(2), p. 491-508 (2009).

[4] **D. NORRIS, R.GIBSON, K. BONGIOVANNI,** *Numerical methods to model infrasonic propagation through realistic specifications of the atmosphere, in Infrasound Monitoring for Atmospheric Studies,* Springer, Dordrecht, p. 535-567 (2010).

[5] **A. LE PICHON, L. CERANNA, J. VERGOZ,** "Incorporating numerical modelling into estimates of the detection capability of the IMS infrasound network", *J. Geophys. Res.*, doi:10.1029/2011JD0166702009 (2012).

Analyses de particules par couplage ablation laser – ICP-MS

Le couplage ablation laser – spectrométrie de masse à source plasma (LA-ICP-MS : Laser Ablation – Inductively Coupled Plasma – Mass Spectrometry) a été utilisé pour la première fois pour l'analyse isotopique de particules d'uranium micrométriques (analyses particulaires). Nous présentons la méthodologie développée qui permet d'immobiliser les particules après dépôt sur un support adapté et de les localiser précisément, puis les résultats d'analyse de deux échantillons. Par rapport aux techniques actuellement utilisées pour les analyses particulaires, le couplage LA-ICP-MS présente une excellente sensibilité, permettant la mesure de la composition isotopique de l'uranium dans des particules infra-micrométriques ne contenant que quelques dizaines de femtogrammes (1 fg = 10^{-15} g) de matière. En dépit de la brièveté et de la nature transitoire des signaux observés, les résultats sont en bon accord avec ceux obtenus avec les techniques établies.

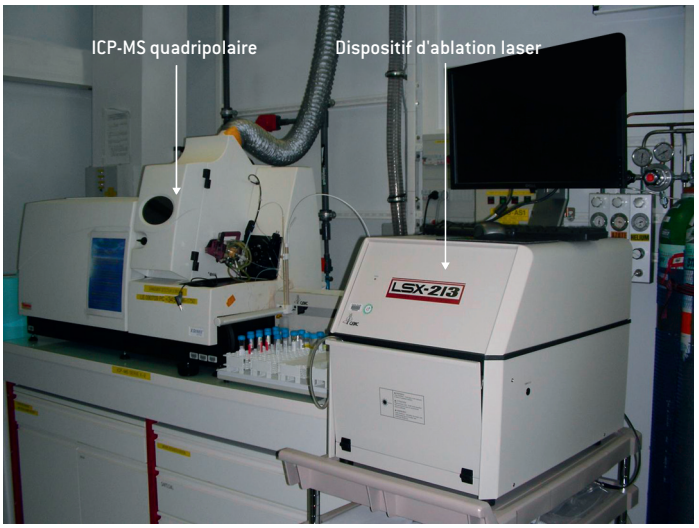
F. Pointurier • A.-C. Pottin • A. Hubert CEA – DAM Île-de-France
C. Pécheyran Laboratoire de chimie analytique bio-inorganique et environnement, UMR 5254, Pau, France

L'application du régime des garanties de l'AIEA est basée sur l'analyse d'« échantillons environnementaux » : des tissus en coton frottés par les inspecteurs sur des surfaces lisses afin de prélever des poussières présentes dans l'installation inspectée. Une fraction infime des particules contenues dans ces prélèvements, appelés « frottis », est issue des matériaux nucléaires, déclarés ou non, utilisés dans l'installation. Quelques laboratoires, moins d'une dizaine, ont ainsi développé des méthodologies d'analyses particulaires, qui consistent à repérer plusieurs particules d'intérêt puis à déterminer la composition isotopique des très faibles quantités d'uranium ou de plutonium présentes dans chacune de ces particules. Ces analyses, effectuées par spectrométrie de masse à ions secondaires (SIMS) ou par association de la technique des traces de fission avec la spectrométrie de masse à thermo–ionisation (FT-TIMS), permettent à la fois de vérifier les déclarations de l'exploitant et de détecter d'éventuelles activités non déclarées. Dans cette étude, nous mettons en œuvre et évaluons une méthode alternative, combinant l'ablation laser, qui possède une résolution spatiale micrométrique, et l'ICP-MS, technique d'analyse isotopique rapide (quelques minutes) et de rendement de mesure élevé [1].

Méthodologie d'analyse

Cette méthodologie a été développée en collaboration avec le Laboratoire de chimie analytique et bio-inorganique et environnement (CNRS / Université de Pau). Une étape essentielle est l'immobilisation des particules après leur extraction du frottis, pour éviter qu'elles ne soient déplacées sous l'impact du faisceau laser. Pour cela, les particules sont déposées sur des disques de polycarbonate avec un composé organique, le collodion, qui, en séchant, emprisonne les particules. Il est également nécessaire de localiser précisément les particules d'uranium sur le disque support. Nous avons utilisé la microscopie électronique à balayage et la technique des traces de fission. Les particules sont ensuite relocalisées avec une précision de ±20 µm après transfert dans la cellule d'ablation grâce à des repères pratiqués sur les disques et un algorithme de repositionnement. Les débris d'ablation produits par interaction du faisceau laser avec la surface analysée sont entraînés par un flux gazeux vers le plasma de l'ICP-MS. Nous avons utilisé un laser nanoseconde permettant un éclairement de 3 GW.cm^{-2} couplé à un ICP-MS quadripolaire (figure 1).

Figure 1.
Photographie du montage expérimental.



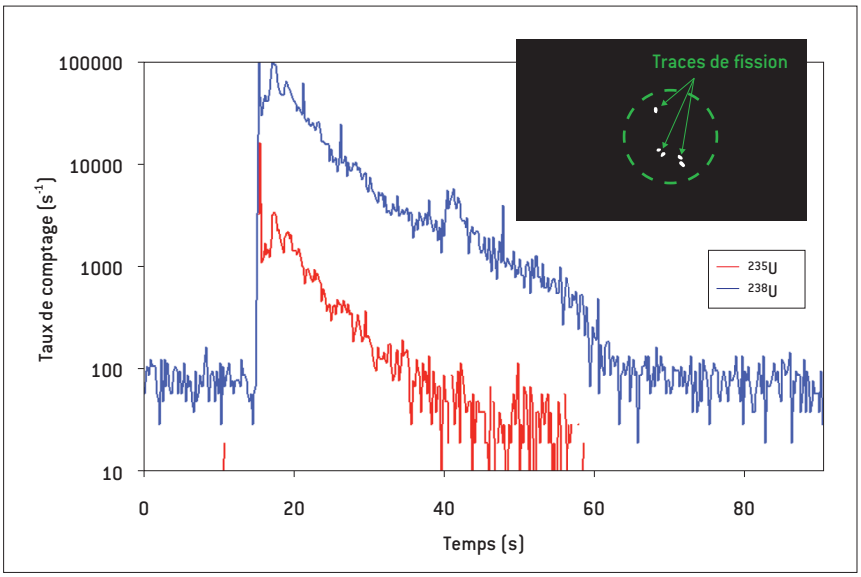


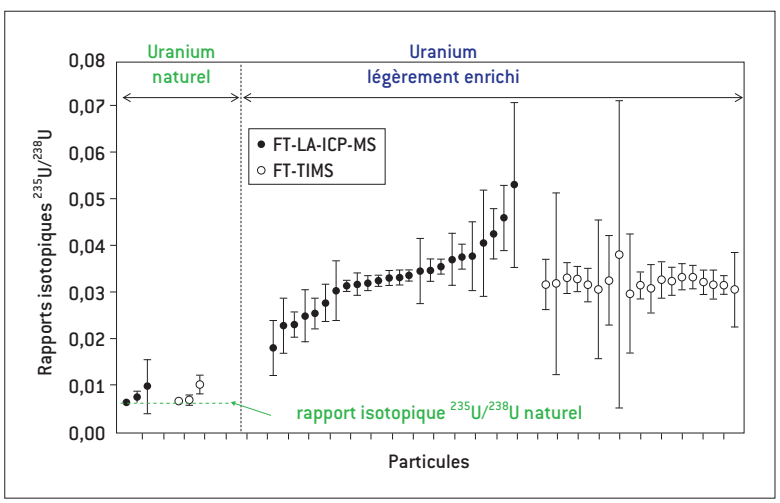
Figure 2. Exemple de signaux obtenus en couplage LA-ICP-MS pour une particule extraite de l'échantillon AIEA 21954-11-01. En encart : les traces de fission correspondantes.

Résultats et performances

Les performances du couplage LA-ICP-MS ont été comparées à celles des techniques FT-TIMS et SIMS à partir de l'analyse d'une part d'un échantillon préparé par le centre de recherche commun européen IRMM (Geel, Belgique) dans le cadre d'un circuit inter-laboratoires et d'autre part d'un frottis prélevé par l'AIEA dans une installation inspectée. Une vingtaine de particules d'uranium extraites de chaque échantillon ont été repérées par microscopie électronique à balayage pour le premier et par traces de fission pour le deuxième, puis analysées par LA-ICP-MS. Seuls les signaux correspondants aux isotopes ^{235}U et ^{238}U ont été mesurés. Les plus petites masses d'uranium analysées dans l'échantillon d'inter-comparaison, estimées à partir de la taille des particules observées en microscopique électronique sont d'environ 15 fg, dont 0,1 fg de ^{235}U. Un exemple de signaux observés est montré sur la figure 2.

Les résultats obtenus pour les deux échantillons sont en excellent accord avec la valeur cible dans le cas de l'échantillon d'inter-comparaison et avec les résultats obtenus avec la technique FT-TIMS dans le cas de l'échantillon AIEA, pour lequel les deux isotopies de l'uranium (appauvri et légèrement enrichi) sont bien identifiées (figure 3). Si les écarts à la justesse et les reproductibilités sont moins bons qu'avec les techniques établies, conséquence de la brièveté des signaux (20-40 s) et de leur caractère transitoire, l'utilisation du couplage LA-ICP-MS permet un gain de temps considérable.

Figure 3. Comparaison des résultats obtenus par FT-TIMS et LA-ICP-MS pour l'échantillon AIEA 21954-11-01.



Conclusion

Nous avons démontré la possibilité d'utiliser le couplage LA-ICP-MS, combiné à la microscopie électronique ou à la technique des traces de fission, pour mesurer la composition isotopique de particules de taille infra-micrométriques. La sensibilité, déjà excellente, ainsi que la justesse et la reproductibilité des analyses pourront être considérablement améliorées par l'utilisation d'un ICP-MS multi-collecteur.

RÉFÉRENCES

[1] **F. POINTURIER, A.-C. POTTIN, A. HUBERT,** "Application of nanosecond-UV Laser Ablation-Inductively Coupled Plasma Mass spectrometry for the isotopic analysis of single submicrometer-size Uranium particles", *Anal. Chem.*, **83**, p. 7841-7848 (2011).

Caractérisation des microballons par holographie

Les cibles cryogéniques destinées au Laser MégaJoule (LMJ) sont composées d'une cavité de conversion cylindrique en or de quelques dizaines de micromètres d'épaisseur, pourvue de 2 ouvertures à ses extrémités pour le passage des faisceaux laser. Le mélange fusible de deutérium-tritium est contenu dans un microballon de polymère amorphe hydrocarboné (ou deutéré) d'environ 2 mm de diamètre et 0,2 mm d'épaisseur. Pour éviter le développement d'instabilités qui perturberaient la mise en condition du mélange fusible et l'amorçage de la réaction de fusion, il est indispensable de maîtriser avec une très grande précision certaines caractéristiques géométriques comme les épaisseurs du microballon et de la couche cryogénique ainsi que leur rugosité. En particulier, il est nécessaire de connaître avec précision le nombre et la taille des défauts présents à la surface externe du microballon (dôme, trou, rayure).

C. Hermerel • A. Choux • P. Mérillot • L. Jeannot **CEA – Valduc**
E. Busvelle • J.-B. Vioix **Laboratoire électronique, informatique et image (LE2I), Université de Bourgogne**

Les simulations numériques effectuées par les équipes de physiciens du CEA – DAM Île-de-France ainsi que les premiers tirs effectués aux États-Unis sur le NIF (*National Ignition Facility*) montrent l'impact que peuvent avoir les défauts présents à la surface d'un microballon lors d'une expérience sur un laser de puissance [1]. Il est donc indispensable de connaître précisément leur nombre, ainsi que leurs dimensions (diamètre à mi-hauteur et hauteur – pour les dômes – ou profondeur – pour les trous).
Une technique optique très innovante permet d'acquérir rapidement les données de toute la surface du microballon. Il s'agit d'un microscope holographique digital (DHM pour *Digital Holography Microscope*). Son architecture est dérivée de celle d'un interféromètre de type Mac Zehnder modifié (figure 1).

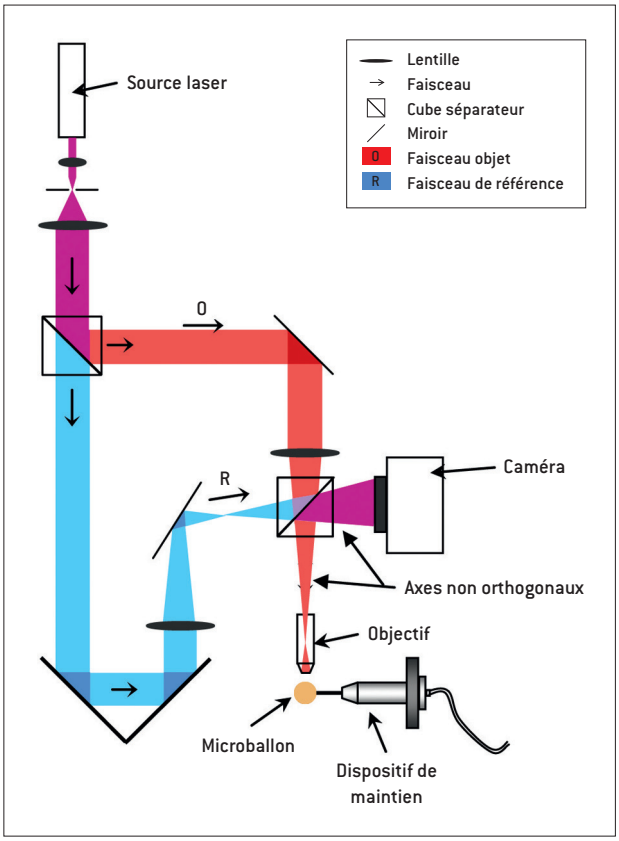
L'intérêt de cet instrument par rapport à un système interférométrique classique (à glissement de franges), est d'être extrêmement plus rapide et d'avoir la capacité d'acquérir plusieurs images 3D en une seconde.

L'utilisation du DHM pour la caractérisation des microballons a nécessité le développement par les équipes du CEA d'un montage mécanique spécifique et d'un logiciel de contrôle commande afin de réaliser une cartographie complète de la surface.

Acquisition et traitement des données

Le microballon est placé sous l'objectif du DHM (figure 1), maintenu par un dispositif d'aspiration fixé sur une table de rotation. Le grandissement de l'objectif et la caméra utilisée permettent de réaliser des images de 250 µm x 250 µm de la surface du microballon.
La configuration de ce dispositif permet l'acquisition d'images holographiques le long des méridiens grâce à la mise en mouvement du microballon (15 bandes méridiennes sont nécessaires pour couvrir 100 % de la surface : bandes blanches sur la figure 2).
Une méthode spécifique de traitement des données a été développée en collaboration avec le laboratoire LE2I de l'Université de Bourgogne afin d'exploiter les nombreuses

Figure 1. Principe du DHM.



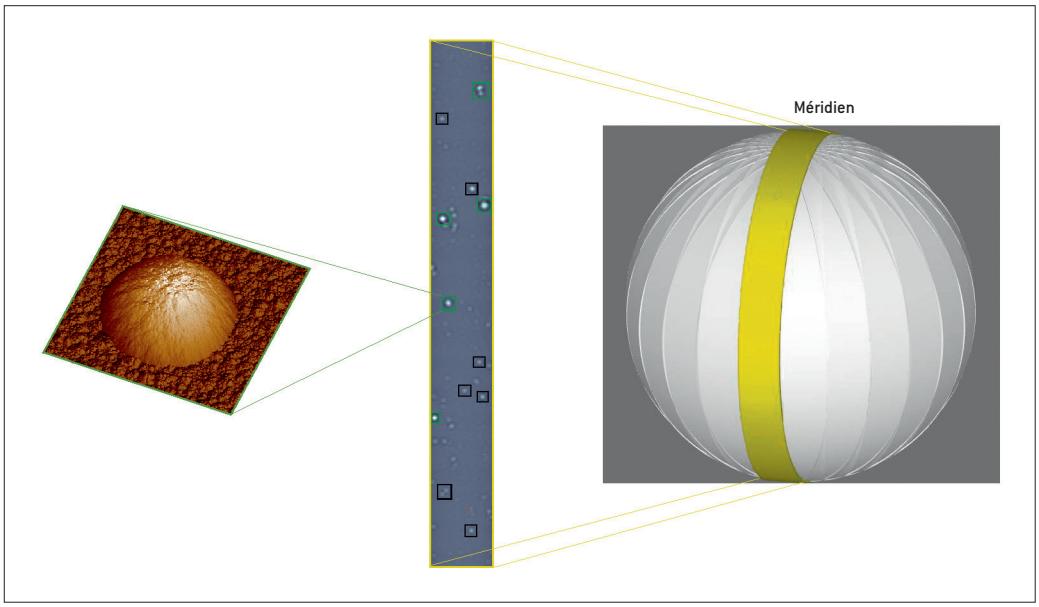
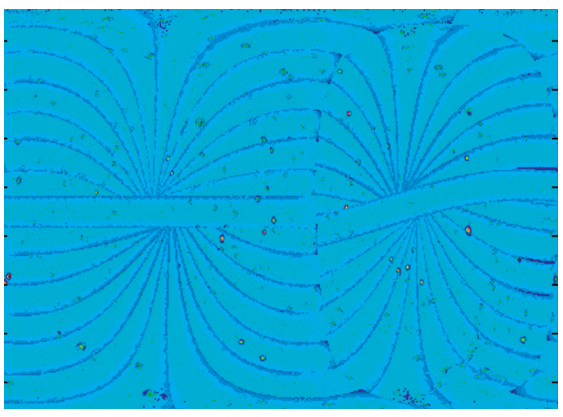


Figure 2.
Principe d'acquisition des données sur un microballon pour le LMJ.

images acquises [2]. Les images obtenues sur chaque méridien sont redressées (retrait du rayon de courbure) puis recollées afin de constituer des bandes (figure 2 : rectangle jaune). Les zones de recouvrement des bandes voisines sont ensuite supprimées par reconnaissance de motifs identiques sur deux bandes adjacentes afin de reconstruire la surface du microballon en 3D et de ne mesurer les défauts qu'une seule fois. Chaque défaut (figure 2 : losange vert) est ensuite caractérisé par sa position dans un repère lié au centre du microballon, par sa hauteur et son diamètre à mi-hauteur (pour les dômes) ou mi-profondeur (pour les trous), par son allongement et par sa concavité (pour les rayures).

La caractérisation d'un microballon dans cette configuration nécessite de le manipuler entre chaque méridien (4 heures sont nécessaires pour acquérir les données). La mise en place d'une nouvelle configuration mécanique permettra d'acquérir les données d'un hémisphère sans intervention humaine (gain en productivité). L'adaptation du logiciel de traitement des données à ce nouveau mode d'acquisition permettra de recoller les deux hémisphères pour reconstituer la surface du microballon (figure 3).

Figure 3. Premier essai de reconstruction 2D de deux hémisphères.



Raccordement métrologique - Incertitudes

Il n'existe pas de microballon avec des défauts étalonnés. Le raccordement métrologique du microscope a été effectué sur le même dôme à mieux que 20 nm (<3%) avec un microscope AFM, qui est lui-même calibré annuellement à l'aide d'un étalon. Sa capacité à mesurer des défauts de la taille des dômes a été démontrée à l'aide d'une mire de calibration pour AFM et d'une marche étalon certifiée COFRAC ; il est capable de mesurer des défauts de 100 nm avec une erreur inférieure à 3 nm.

Les incertitudes de mesures liées à l'utilisation du logiciel de comptage des défauts restent encore à être estimées en simulant des données expérimentales connues (dômes et trous) de la totalité de la surface d'un microballon virtuel.

Conclusion

L'utilisation d'un microscope holographique permet de caractériser finement la surface d'un microballon en y dénombrant les défauts ainsi que leurs caractéristiques : la largeur à mi-hauteur et la hauteur pour les dômes, la largeur à mi-profondeur et la profondeur pour les trous et la concavité, l'allongement et le rapport périmètre-surface pour les rayures. Ces différentes mesures permettent de dire si le microballon répond aux spécifications fixées par les physiciens pour l'ignition sur le LMJ.

L'optimisation du nombre de clichés à acquérir pour couvrir un hémisphère est en cours d'étude (acquisition d'images le long d'une hélice) ; ceci permettra, à terme, de réduire encore le temps d'acquisition des données, principal contributeur à la durée de caractérisation.

RÉFÉRENCES

[1] **S.W HAAN *et al.*,** « NIF ignition target requirements, margins, and uncertainties: status February 2010 », *Fusion Science and Technology*, **59**, p .1-7 (2011).

[2] **C. HERMEREL, A. CHOUX, L. JEANNOT, E. BUSVELLE, P. MERILLOT, O. LEGAIE,** « Characterization of the microshell surface using holography », *Fusion and Science Technology*, p. 110-115 (2011).

Analyse 3D d'électrodes SOFC par tomographie FIB

La microstructure en trois dimensions d'anodes de piles à combustible SOFC (Solid Oxide Fuel Cell) a été obtenue en utilisant un faisceau d'ions focalisé couplé à un microscope électronique à balayage (FIB-SEM). Les paramètres de préparation des échantillons et les conditions opératoires ont été optimisés pour obtenir une reconstruction de très bonne qualité sans artefact. Les fractions volumiques des phases, la manière dont elles sont connectées, leur surface spécifique et les longueurs des lignes correspondant à l'intersection des trois phases analysées sont les paramètres étudiés. Des valeurs de conductivités électronique et ionique ont été calculées à partir du volume reconstruit en résolvant l'équation de transport diffusif par une méthode de différence finie implicite.

E. Bruneton • N. Vivet CEA – Le Ripault

Les piles à combustible SOFC offrent les rendements en électricité les plus élevés. Du fait de leur fonctionnement à température élevée (700-900°C), elles peuvent également produire de la chaleur. De nombreuses études expérimentales ayant démontré que les performances électrochimiques des électrodes à travers lesquelles circule le gaz combustible, sont dépendantes de leur microstructure, il est donc nécessaire de pouvoir caractériser cette microstructure de la manière la plus précise possible. La diffusion des gaz et les réactions chimiques se produisant à l'intérieur du réseau poreux de l'électrode et aux points de rencontre entre le solide et le gaz, une description en trois dimensions (3D) est incontournable pour appréhender les phénomènes. C'est en 2006 que, pour la première fois, l'équipe de S.A. Barnett [1] peut annoncer « *we now can look inside fuel cells* » en publiant ses travaux sur la reconstruction 3D d'une anode SOFC par tomographie FIB (*Focused Ion Beam*). Cette technique permet en effet d'obtenir une résolution suffisamment élevée pour visualiser les différents constituants. Les dimensions élémentaires correspondent à celles des cristaux formant la phase solide et sont typiquement de l'ordre de 0,2-0,3 µm. Le principe de cette technique repose sur l'ablation physique du matériau par un faisceau d'ions, généralement des ions gallium. La reconstruction est réalisée par superposition d'images prises au microscope électronique à balayage (SEM pour *Scanning Electron Microscope*) après chaque ablation. Le volume reconstruit par interpolation entre deux images peut atteindre plusieurs milliers de µm^3, ce qui est généralement représentatif du matériau.

L'analyse par cette technique de plusieurs électrodes à hydrogène, principal combustible des SOFC, de type « cermet » (composée d'une céramique et d'un métal) est présentée ici [2]. L'appareil utilisé était un FIB-SEM Strata

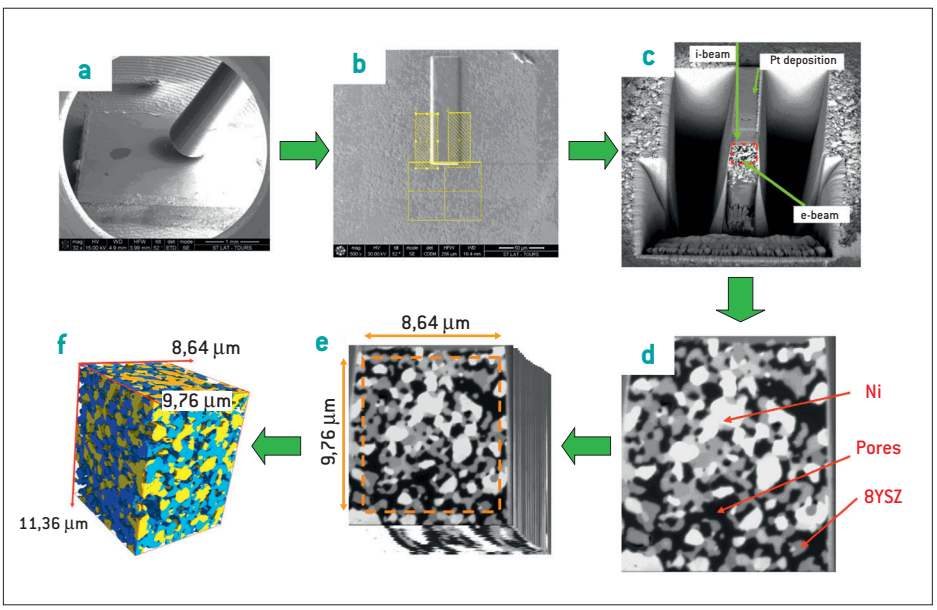
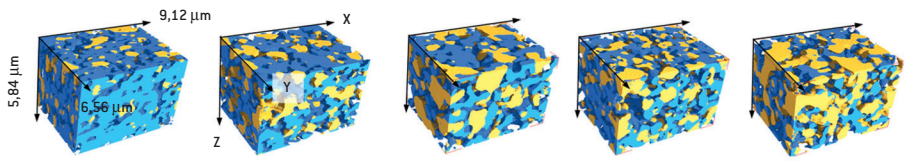


Figure 1.
Principales étapes de la reconstruction 3D d'une électrode SOFC.
(**a**) : dépôt d'une couche de protection de platine à la surface de l'échantillon,
(**b**) : dégagement de la zone d'intérêt par les ions gallium,
(**c**) : image de la zone d'intérêt (pointillés),
(**d**) : image agrandie de la zone d'intérêt, (**e**) : empilements d'images,
(**f**) : reconstruction du volume.



Échantillons		1	2	3	4	5
Pore	Fraction volumique (%)	35	36	39	41	48
	Pores participant à la percolation (%)	98,9	99,6	99,5	99,8	99,7
YSZ	Fraction volumique (%)	50	48	35	33	22
	Particules participant à la percolation (%)	99,9	99,8	99,1	99,2	96,7
Ni	Fraction volumique (%)	15	16	26	26	30
	Particules participant à la percolation (%)	23	25	43	44	58
TPB	Longueur de TPB ($\mu m.\mu m^{-3}$)	8,8	9,3	7,5	11,2	7,2

Figure 2.
Représentation de Ni (jaune), YSZ (bleu) et pores (transparent) et résultats de l'analyse d'électrodes associée (tableau) avec différentes concentrations des phases.

Tableau 1. Résultats des calculs de conductivités des électrodes étudiées.

Échantillon	1			2			3			4			5		
Direction	x	y	z	x	y	z	x	y	z	x	y	z	x	y	z
σ_e (10^{-3} S.cm^{-1})	0	0	0	0	0	0	124	209	296	281	252	66	561	378	473
σ_i (10^{-3} S.cm^{-1})	4,16	2,37	4,33	3,43	3,35	3,11	1,70	1,58	1,70	1,43	1,19	1,03	0,47	0,40	0,39

400 de marque FEI. L'ensemble des conditions expérimentales a été optimisé afin d'obtenir un contraste maximal et reproductible entre les trois phases du matériau, contenant dans notre cas du nickel (Ni), de la zircone dopée à l'oxyde d'yttrium (YSZ) et des pores. Les piles d'images contiennent un peu plus de 100 images. Les conditions d'ablation ont été sélectionnées et calibrées afin d'obtenir un espace de 100 nm entre deux images successives. Les volumes obtenus ont des dimensions voisines de 1 000 µm^3. Les principales étapes de la reconstruction puis de la séparation des phases par seuillage sont illustrées sur la **figure 1**.

Des électrodes contenant différentes teneurs en Ni, YSZ et pores ont été étudiées **[3]** afin d'extraire, de manière quantitative, des paramètres rendant compte de la distribution des phases. La fraction volumique de chaque phase, leur connectivité et la longueur des joints triples aux points de rencontre des trois phases (ou « three phase boundary », TPB) ont été évaluées. La connectivité des phases rend compte de leur aptitude à conduire ou non les électrons ou les ions, alors que la longueur des TPB permet d'estimer le nombre de sites participant activement à la réaction électrochimique, et donc de comparer différentes électrodes au niveau de leur efficacité (**figure 2**).

Une estimation des conductivités électrique (σ_e), *via* les particules de Ni, et ionique (σ_i) pour le transport des ions O^{2-} *via* les particules de YSZ a été réalisée à partir des volumes reconstruits. Une approche d'homogénéisation a permis d'obtenir des valeurs de conductivité effective D_{eff} dans une direction donnée. Le principe est d'appliquer une contrainte au matériau réel dans la direction choisie c'est-à-dire des valeurs d'entrée et de sortie – θ_1 et θ_2 – et d'extraire une grandeur physique. Connaissant l'expression analytique du flux de θ dans un milieu homogène, on en déduit la conductivité que devrait avoir ce milieu homogène pour obtenir la même valeur de flux. Les principales étapes de cette méthode de calcul sont les suivantes : *i)* application d'un gradient de potentiel (électrique ou ionique) et choix des conditions aux limites, *ii)* détermination de la distribution du potentiel au sein du volume par l'équation de transport diffusif, *iii)* calcul du flux issu de cette équation, *iv)* expression du flux dans le cas d'un matériau homogène, *v)* égalité des flux déterminée en *iii)*, et *vi)* obtention de la conductivité effective pour la direction x_i choisie (direction du gradient initial).

Selon cette méthodologie, les valeurs obtenues sont présentées sur le **Tableau 1**.

RÉFÉRENCES

[1] J. R. WILSON *et al.*, "Three-dimensional reconstruction of a solid-oxide fuel-cell anode", *Nature Materials*, **5**, p. 541-544 (2006).

[2] N. VIVET, S. CHUPIN, E. ESTRADE, T. PIQUERO, P.-L. POMMIER, D. ROCHAIS, E. BRUNETON, "3D Microstructural characterization of an SOFC anode reconstructed by FIB tomography", *Journal of Power Sources*, **196**, p. 7541-7549 (2011).

[3] N. VIVET, S. CHUPIN, E. ESTRADE, A. RICHARD, S. BONNAMY, D. ROCHAIS, E. BRUNETON, "Effect of Ni content in SOFC Ni-YSZ cermets: a three-dimensional study by FIB-SEM tomography", *Journal of Power Sources*, **196**, p. 9989-9997 (2011).

Modélisation de la nucléation des bulles d'hélium 3 dans un tritiure métallique à l'aide d'un automate cellulaire

La modélisation des phénomènes physiques induisant la germination des bulles d'hélium 3 à l'échelle microscopique dans le tritiure de palladium a été entreprise en s'appuyant sur un automate cellulaire tridimensionnel. Au moyen de probabilités de changements d'états des cellules de l'automate, les phénomènes physiques impliqués dans la genèse des bulles ont été modélisés.
Un des principaux résultats montre que la phase de germination est quasiment achevée après quelques jours de vieillissement, et ce quels que soient les paramètres d'entrée appliqués. Le système fait croître par la suite les bulles au lieu d'en créer de nouvelles. Il a également été montré que la densité de bulles atteinte est très dépendante de la mobilité de l'hélium 3 au cours des premiers jours de vieillissement. Plus grande est la mobilité de l'hélium 3, plus faible est la densité de bulles.

M. Segard • A. Fabre • S. Thiébaut CEA – Valduc
F. Montheillet École nationale supérieure des mines, UMR-CNRS 5146, Saint-Etienne

Le tritium est un isotope de l'hydrogène essentiel pour la production d'énergie par fusion thermonucléaire. Cependant, en raison de sa nature radioactive et de sa grande diffusivité, des conditions de stockage particulières sont requises afin de pouvoir le manipuler en toute sécurité. Ainsi, le tritium est souvent stocké sous forme de tritiures métalliques. Le palladium est couramment employé comme métal hôte puisque, entre autres, il absorbe et désorbe le tritium aisément.

Néanmoins, l'hélium 3 apparaissant suite à la décroissance radioactive du tritium dans le palladium ($T \rightarrow {}^{3}He^{+} + \beta^{-} + \upsilon$) va précipiter sous forme de bulles nanométriques et, au cours du vieillissement, ces bulles vont modifier les propriétés mécaniques [1] et thermodynamiques [2] du tritiure. Afin de prédire l'évolution des propriétés du matériau au cours du vieillissement, il est indispensable de comprendre les mécanismes régissant le comportement de l'hélium 3 à l'échelle microscopique.

La présente étude est focalisée sur la modélisation de la phase de nucléation des bulles d'hélium [3]. Cette modélisation est entreprise à l'aide d'un automate cellulaire décrivant le matériau à l'échelle atomique (figure 1). L'objectif est de caractériser la manière dont se forment les bulles en fonction de paramètres définis (mobilité des atomes d'hélium, quantité de défauts…).

Les phénomènes physiques impliqués dans la genèse des bulles, que ce soit la diffusion du tritium, la formation d'hélium 3 par décroissance du tritium, la diffusion de l'hélium, l'auto-piégeage des atomes d'hélium ou la croissance des bulles, sont pris en compte dans ce modèle. Cela est réalisé grâce à l'utilisation de simples règles de changement d'état des cellules de l'automate. La présence de défauts préexistants comme des lacunes est également considérée.

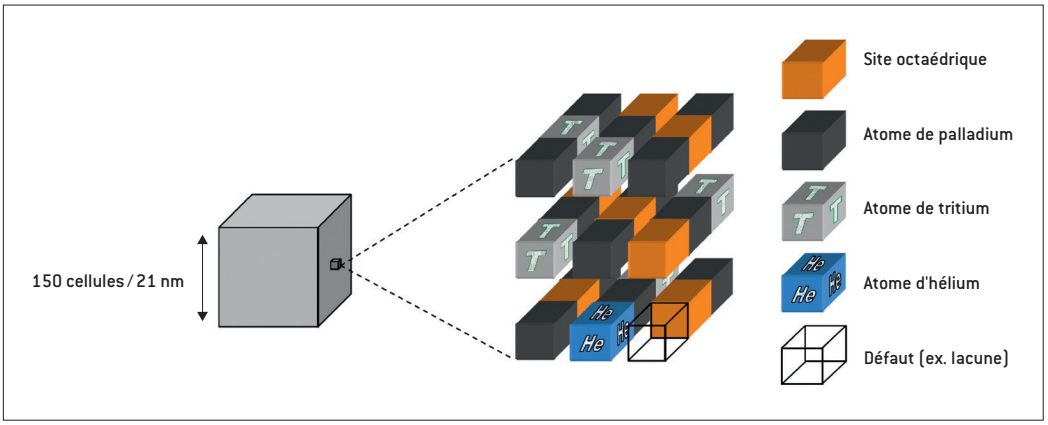


Figure 1. Représentation schématique de l'automate cellulaire dans sa configuration actuelle.

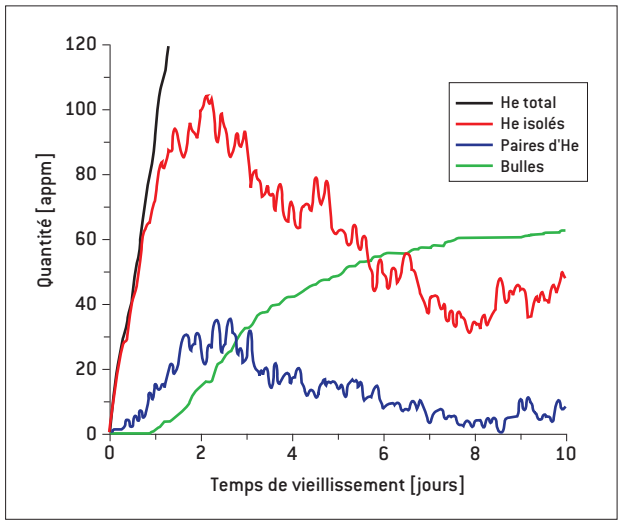


Figure 2.
Évolution du nombre d'atomes d'hélium 3 total dans le système, du nombre d'atomes d'hélium isolés, du nombre de paires d'atomes d'hélium et du nombre de bulles, en l'absence de sites de piégeage.

Résultats du modèle dans le cas général

L'évolution typique, en fonction du vieillissement, de la concentration de l'hélium sous ses différentes formes dans le matériau, qu'il soit « isolé » (atome diffusant de site interstitiel en site interstitiel), en paire, ou en bulle est présentée sur la **figure 2**.

Initialement, les atomes isolés sont seuls et diffusent librement. Quand leur concentration s'élève, 2 atomes d'hélium isolés ont une plus grande probabilité de se rencontrer et forment une paire difficilement dissociable. Un troisième atome peut rencontrer la paire et être à son tour piégé, un peu plus profondément. Tous les autres atomes se joignant à l'amas seront piégés davantage.

Dans le modèle, une bulle d'hélium est comptabilisée dès que la taille d'un amas atteint trois atomes (l'amas est supposé indissociable à ce stade). Cela explique l'augmentation du nombre d'atomes isolés en premier, puis des paires, et enfin des bulles. La quantité d'atomes isolés décroît ensuite puisque l'augmentation du nombre de bulles fournit des sites de piégeage additionnels. Par conséquent, moins de paires sont formées et la vitesse d'apparition des bulles décroît.

Finalement, quand le nombre de bulles est suffisamment important, un atome isolé a une probabilité plus élevée de rencontrer une bulle plutôt qu'un autre atome isolé durant sa diffusion : un régime quasi stationnaire est atteint, dans lequel les nombres d'atomes isolés, de paires et de bulles n'évoluent plus significativement. Il est remarquable de noter que ce régime apparaît seulement après 10 jours de vieillissement (à comparer à la durée de vie du dispositif de stockage qui peut dépasser 10 ans). Dans cette configuration de l'automate, la quantité de bulles ramenée au volume modélisé donne une densité de bulles de 2.10^{25} m^{-3}, proche de ce qui est mesuré expérimentalement [4].

Influence de la mobilité de l'hélium sur la quantité de bulles formées

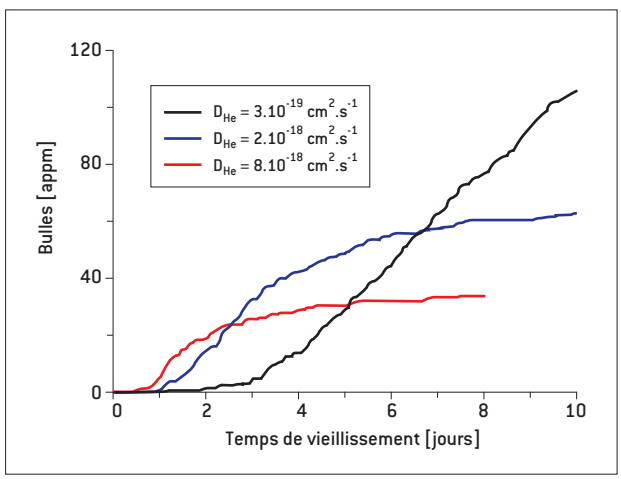
En fonction de la température de stockage du tritiure métallique, l'hélium n'a pas la même mobilité. Or, la diffusivité de l'hélium va influer sur la quantité de bulles nucléant au sein du matériau. Pour souligner cette influence, différents coefficients de diffusion (D_{He}) ont été attribués à l'hélium et les évolutions au cours des premiers jours du vieillissement ont été calculées.

Quand D_{He} diminue, une nette augmentation de la quantité d'atomes isolés, et par conséquent du nombre de paires, a pu être soulignée. Cela impacte fortement la quantité de bulles formées (**figure 3**): leur nombre augmente d'un facteur supérieur à 4 quand D_{He} baisse d'un facteur 25 (soit une baisse de la température d'environ 10%).

Conclusion

Cette étude a pu montrer que la densité de bulles d'hélium est établie très rapidement au cours du vieillissement, et ce, quels que soient les paramètres d'entrée appliqués. Cette densité de bulles est très dépendante de la diffusion de l'hélium, et il a pu être mis en évidence que la baisse de la mobilité de l'hélium entraîne une hausse de la quantité de bulles dans le système. Par conséquent, le contrôle de la température de stockage du tritiure au cours des premiers jours est un point clé de la maîtrise du vieillissement.

Figure 3. Évolution du nombre de bulles sur 8 à 10 jours de vieillissement en fonction du coefficient de diffusion de l'hélium.



RÉFÉRENCES

[1] **F. MONTHEILLET, D. DELAPLANCHE, A. FABRE, E. MUNIER, S. THIÉBAUT,** "A mechanical analysis of metallic tritide aging by helium bubble growth", *Mater. Sci. Eng. A*, **494**, p. 407-415 (2008).

[2] **S. THIÉBAUT, M. DOUILLY, S. CONTRERAS, B. LIMACHER, V. PAUL-BONCOUR, B. DÉCAMPS,** A. Percheron-Guégan, "He-3 retention in LaNi5 and Pd tritides: Dependence on stoichiometry, He-3 distribution and aging effects", *J. Alloys. Comp.*, **446-447**, p. 660-669 (2007).

[3] **M. SEGARD, A. FABRE, S. THIÉBAUT, F. MONTHEILLET,** "Bubble nucleation process in a metal tritide modeled using a cellular automaton", *J. Nucl. Mat.*, **420**, p. 388-395 (2012).

[4] **A. FABRE, B. DÉCAMPS, E. FINOT, J. M. PÉNISSON, J. DEMOMENT, S. THIÉBAUT, S. CONTRERAS, A. PERCHERON-GUÉGAN,** "On the correlation between mechanical and TEM studies of the aging of palladium during tritium storage", *J. Nucl. Mat.*, **342**, p. 101-107 (2005).

Hiérarchie des données en parallélisme hybride

L'avènement des processeurs multi-coeurs a provoqué une évolution des supercalculateurs vers des noeuds de calcul comprenant un grand nombre de coeurs. Il devient alors nécessaire d'adapter la manière d'exploiter de telles grappes en utilisant une programmation parallèle hybride multithread.
Une approche permettant une évolution progressive des applications est l'utilisation d'implémentations MPI (Message Passing Interface) à base de threads (thread-based MPI) en conjonction avec un support exécutif OpenMP. Néanmoins, l'intégration de ces deux approches nécessite la mise en place d'un contrôle fin du placement des données et de leur visibilité, chaque modèle proposant une construction différente pour déclarer des variables privées. Cet article propose d'étendre le mécanisme TLS (Thread-Local Storage) pour gérer le placement des données privées et ainsi permettre la programmation hybride thread-based MPI + OpenMP.

P. Carribault, M. Pérache, H. Jourdren CEA - DAM Île-de-France

Modèles de programmation à base de threads

L'évolution des architectures des supercalculateurs incite actuellement à explorer la programmation parallèle hybride à base de threads, qui consiste à utiliser plusieurs flots d'exécution au sein d'un processus en partageant le même espace mémoire. Dans ce contexte, le CEA/DAM développe la plateforme *Open Source MPC* [1] qui fournit un support exécutif de type *thread-based MPI* (modèle MPI [2] utilisant des threads à la place de processus système) et une implémentation du modèle OpenMP [3]. MPC permet ainsi une évolution progressive des codes de calcul, du modèle MPI pur vers un modèle hybride à base de threads.

Dans un tel modèle de programmation multithread à plusieurs niveaux, le placement ainsi que la visibilité des données sont cruciaux. En effet, dans les approches *thread-based MPI*, il est nécessaire de pouvoir associer des données à chaque tâche MPI qui est aussi un thread. En ce qui concerne le modèle OpenMP, la problématique est la même : il faut pouvoir associer une donnée à chaque thread. De plus, les modèles de programmation étant imbriqués, les données associées à chaque tâche MPI doivent êtres partagées entre les threads OpenMP crées à partir de cette tâche MPI. On observe alors une hiérarchie de données plaquée sur l'imbrication des modèles de programmation.

Or, les méthodes existantes de stockage privé par thread (*Thread-Local Storage* ou TLS) n'autorisent pas cette hiérarchie de données. Cet article présente donc une extension du mécanisme de TLS pour la programmation hybride *thread-based* MPI + OpenMP. Ce nouveau mécanisme est appelé Extended TLS [4].

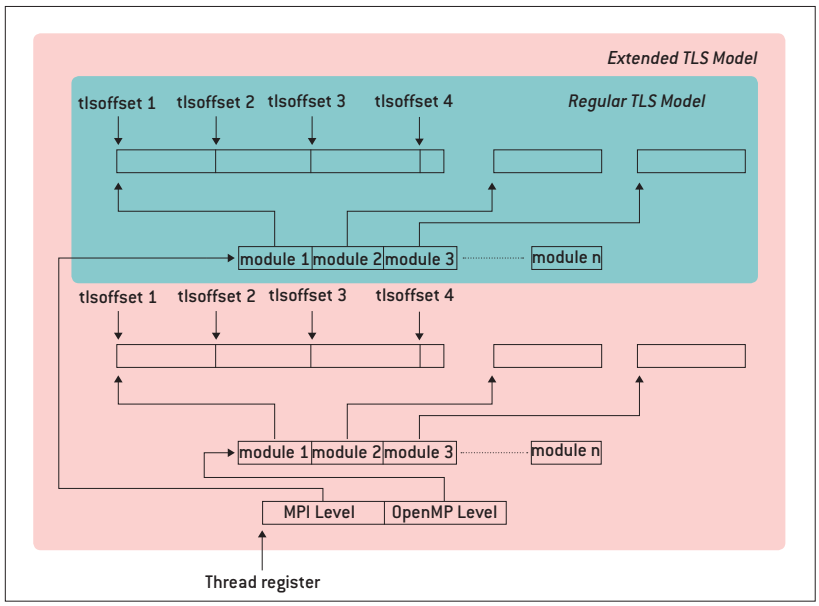


Figure 1. Modèles TLS général et étendu.

Tableau 1. Statistiques sur des benchmarks NAS Multi-Zone.

Statistiques	BT (Block Tridiagonal Solver)	LU (Lower-Upper Symmetric Gauss-Seidel Solver)	SP (Scalar Pentadiagonal Solver)
Langage	Fortran	Fortran	Fortran
Lignes de code	5 154	4 618	5 085
Nombre de variables globales	173	175	132
Accès statiques aux variables globales	258	274	273
Nombre de variables privées OpenMP	11	11	5
Accès aux variables privées OpenMP	44	50	58

Extension du support des variables privées par thread

Le mécanisme de TLS permet le stockage de données privées par thread, mais il ne dispose que d'un seul niveau. Il ne permet pas d'intégrer une notion sémantique liée au modèle de programmation. Le stockage des données dans les segments TLS se fait grâce à trois niveaux d'indirection (figure 1). Cette dernière fait appel à un mode d'adressage indirect, dans lequel l'adresse d'un élément est fournie par lecture d'un autre élément. Le premier niveau est gardé par un registre spécifique, mis à jour à chaque changement de contexte entre threads. Il permet d'indexer la table des variables privées. Le second niveau permet d'identifier la bibliothèque qui a déclaré la variable. Le troisième niveau est un décalage (*offset*) dans la structure de données contenant toutes les variables privées.L'extension des TLS que nous proposons ajoute un niveau sémantique avant le choix de la bibliothèque (figure 1). Précisément, le premier niveau concerne toujours un registre tandis que le second niveau représente le modèle de programmation. Avec une gestion adaptée de la création des threads et du changement de contexte, il est alors possible de plaquer la hiérarchie des données privées sur l'imbrication des modèles de programmation.

Expérimentations

L'implémentation du mécanisme *Extended TLS* nécessite tout d'abord une modification de la chaîne de compilation. En effet, la déclaration du niveau sémantique de chaque variable se fait par mot-clé.

De plus, il est nécessaire de générer un code spécifique pour chaque accès à ces variables afin de calculer l'adresse mémoire de la variable en fonction du thread, du niveau sémantique, de la bibliothèque et du décalage. Cette opération est réalisée grâce à un appel de fonction ayant pour paramètre le numéro de la bibliothèque et le décalage.

Nous avons alors implémenté ce mécanisme dans la plateforme MPC comprenant un compilateur GNU GCC « patché » [5]. Cette implémentation a été validée par l'exécution de la suite de benchmarks NAS comprenant des mini-applications de simulation numérique parallélisées en MPI, OpenMP et MPI/OpenMP (NAS Multi-Zone).

Le tableau 1 illustre l'ampleur des modifications effectuées automatiquement par notre mécanisme dans MPC. Ces applications MPI/OpenMP Fortran comportent un nombre important de variables globales par rapport aux nombre de lignes de code. Ces variables ont alors été automatiquement placées au niveau sémantique MPI du mécanisme *Extended TLS*. Enfin, ces applications exploitent également plusieurs variables privées à chaque thread OpenMP : ces variables ont été mises au niveau sémantique OpenMP. Grâce à ces modifications, tous les accès à ces variables sont valides, respectant ainsi la sémantique parallèle du programme.

Perspectives

La mise en place d'un mécanisme étendu pour la gestion des données dans des modèles de programmation à base de threads permet la migration d'applications parallèles, depuis un modèle purement MPI vers un modèle plus souple mêlant une approche *thread-based MPI* avec des threads OpenMP. Avec les évolutions actuelles des architectures de processeurs, ce mécanisme, nommé *Extended TLS* [4], est alors une étape importante vers l'exploitation des machines de classe exaflopique.

Au niveau des perspectives, d'autres codes de calcul et les nouvelles architectures *manycore* devront être évaluées. Enfin, les modifications apportées au compilateur et au support exécutif MPC empêchent certaines optimisations statiques améliorant l'accès aux variables privées : il nous faudra porter ces optimisations (remplacement d'un appel de fonction par des mouvements de registres) pour atténuer le surcoût, qui peut actuellement s'élever à 15% selon les applications.

RÉFÉRENCES

[1] **P. CARRIBAULT, M. PERACHE, H. JOURDREN,** "Enabling Low-Overhead Hybrid MPI/OpenMP Parallelism with MPC", *Proc. International Workshop on OpenMP (IWOMP'2010),* Tsukuba, Japan (2010).

[2] Message Passing Interface Forum, "MPI: A Message Passing Interface Standard", http://mpiforum.org (2008).

[3] **ARCHITECTURE BOARD**, "OpenMP version 3.0", http://www.openmp.org (2008).

[4] **P. CARRIBAULT, M. PERACHE, H. JOURDREN,** "Thread-Local Storage Extension to Support Thread-Based MPI/OpenMP Applications", *Proc. International Workshop on OpenMP (IWOMP'2011),* Chicago, USA (2011).

[5] **GNU**, "GCC: GNU Compiler Collection", http://gcc.gnu.org (2011).

Prédiction de réponses de capteurs chimiques

Protéger les populations contre la menace terroriste ou la pollution, lutter contre le trafic de narcotiques, sont autant de domaines où les capteurs chimiques jouent un rôle essentiel. Ces dispositifs associent un moyen de mesure physique et un matériau capable d'adsorber une molécule cible présente dans l'atmosphère. La nature chimique des composés est donc un élément primordial car elle conditionne le niveau de détection du capteur ainsi que le caractère sélectif et réversible de l'adsorption. Améliorer la connaissance des phénomènes mis en jeux et disposer d'outils de prédiction doivent permettre d'optimiser le développement de tels systèmes pour être capable de sélectionner le bon matériau *a priori* ou d'anticiper sa réponse vis-à-vis d'autres composés (interférents potentiels ou nouvelle menace). La démarche originale que nous présentons a permis de jeter les bases d'un modèle de calcul des réponses capteurs à partir de la formule chimique des composés.

P. Palmas • J. Klingenfus • D. Mathieu • P. Montmeat • L. Hairault **CEA – Le Ripault**
C. Methivier • C. M. Pradier **Laboratoire de réactivité des surfaces, LRC CEA/CNRS/UPMC n°1, Université de Paris VI**

La recrudescence de la menace terroriste a stimulé la recherche de nouveaux moyens de détection d'explosifs ou de leurs précurseurs. Le centre CEA du Ripault, engagé dans cette voie, développe des capteurs chimiques constitués d'un dispositif de mesure tel que la microbalance à quartz (MBQ) recouvert à sa surface par un matériau sensible. Le matériau a donc le rôle essentiel d'adsorber certaines molécules (cibles) présentes dans l'air à de faibles concentrations sans être affecté par la présence d'autres composés (interférents). Savoir interpréter les phénomènes et être capable de prédire les réponses du capteur doit permettre de rationnaliser la démarche de développement de tels systèmes. Notre approche s'appuie sur une analyse thermodynamique et fait appel aux méthodes de caractérisations physico-chimiques et de simulation numérique.

Mesures capteur et exploitation thermodynamique

L'aptitude d'un matériau à adsorber une molécule gazeuse (ou « analyte ») dépend de plusieurs paramètres physiques et chimiques. Pour étudier l'influence de la structure chimique qui gouverne la sélectivité, notre étude a porté sur une famille de polysiloxanes comportant une même chaîne principale mais des chaînes latérales de fonctionnalisations différentes [1]. Des MBQ recouvertes de ces différents matériaux sensibles ont été exposées à des pressions de vapeur calibrées de différents analytes. Lors d'une adsorption, la fréquence du quartz diminue, puis tend vers une valeur d'équilibre (figure 1). La variation globale ΔF est reliée à la constante de partition K de Henry de l'analyte entre la phase gaz et le liquide.

K peut être calculé en première approximation à partir de l'enthalpie libre de condensation de l'analyte ΔG_{cond} et celle de mélange en phase condensée avec le polymère ΔG_{mix} par

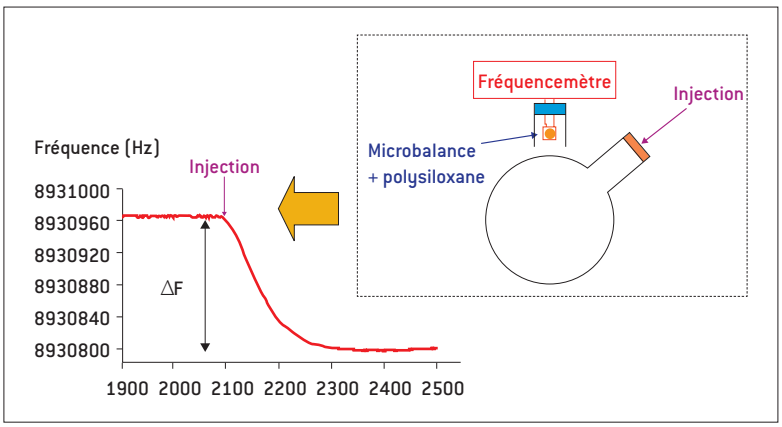
$$-RT \ln K = \Delta G = \Delta G_{cond} + \Delta G_{mix}$$

Alors que ΔG_{cond} peut être estimé à partir de données de la littérature, ΔG_{mix} est généralement méconnu. Ce terme dépend essentiellement de l'existence d'interactions intermoléculaires. Pour les capteurs réversibles, les interactions sont faibles, ce qui rend difficile la mesure de ΔG_{mix} par des méthodes classiques. La méthodologie proposée ci-après utilise la RMN du ^{1}H de mélanges analyte/matériau sans solvant [2].

Détermination de l'enthalpie libre de mélange par RMN

Le déplacement chimique RMN, abondamment utilisé par les chimistes pour élucider la structure des molécules, est également sensible à l'existence d'interactions intermoléculaires [3]. Dans des mélanges binaires, celles-ci peuvent être étudiées en mesurant les déplacements chimiques du ^{1}H obtenus pour plusieurs compositions. Les différences

Figure 1. Montage expérimental utilisé pour les mesures par microbalance à quartz et courbe cinétique d'adsorption enregistrée au moyen du fréquencemètre.



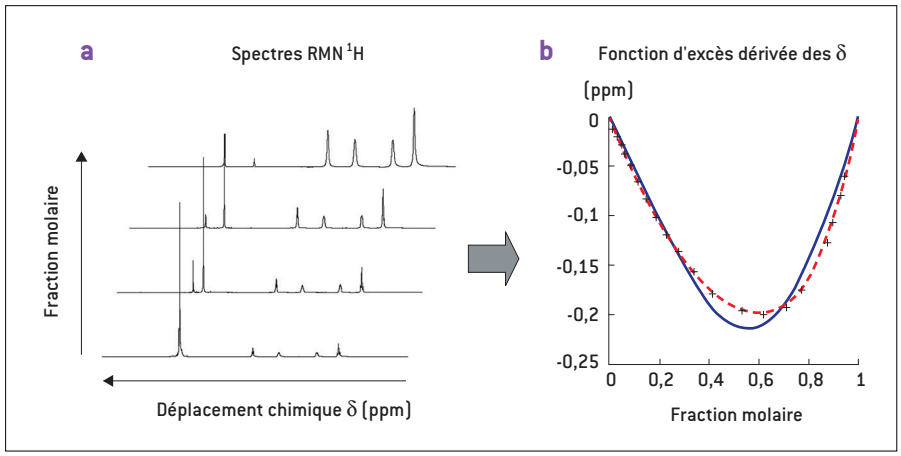
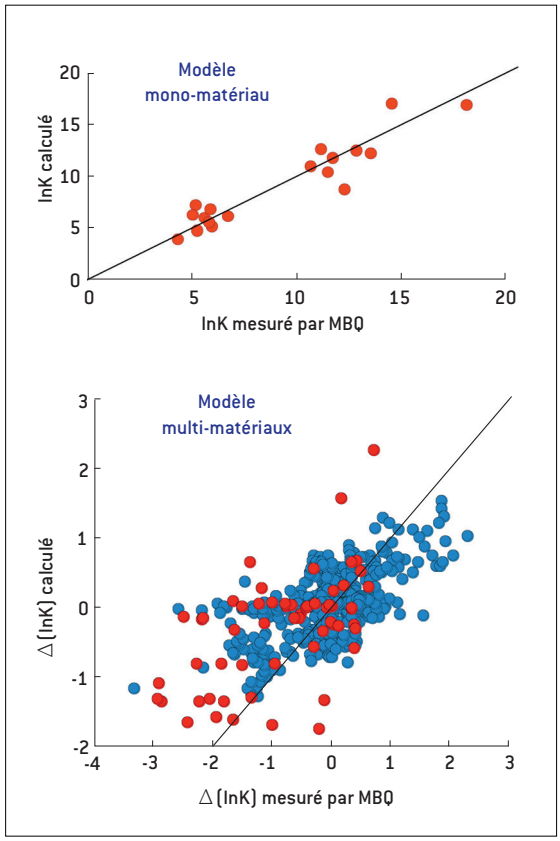


Figure 2.
(**a**) : Spectres d'un mélange binaire obtenus pour différentes compositions; (**b**) : Exemple de fonction d'excès dérivée des déplacements chimiques (croix), puis ajustée selon le modèle de Wilson (courbe rouge en pointillé) ou en supposant la formation d'un complexe (courbe bleue).

obtenues résultent soit de l'évolution des caractéristiques globales du liquide, soit d'une organisation locale au voisinage des molécules. La contribution locale peut être extraite en combinant judicieusement les déplacements chimiques mesurés, puis en calculant une fonction d'excès. ΔG_{mix} s'obtient alors à partir des termes énergétiques d'interaction issus d'un ajustement des courbes selon le modèle de Wilson, plus performant qu'un modèle classique fondé sur la formation d'un complexe moléculaire (figure 2). Cette théorie relie les énergies d'interaction entre molécules dans un mélange à l'existence d'un écart entre la composition globale et celle s'établissant localement au voisinage des molécules.

Figure 3. Comparaison des réponses expérimentales du capteur avec celles calculées à partir de modèles mono-matériau ou multi-matériaux. Dans ce dernier cas, seul des réponses relatives (différences de lnK) sont accessibles. Les points rouges représentent les données mesurées au CEA, les points bleus celles déduites de données de la littérature [4]. La courbe en trait plein représente la droite y = x.



Construction d'un modèle et prédiction des réponses capteur

Généralement ΔG_{cond} étant très supérieur à ΔG_{mix}, les réponses MBQ d'un matériau exposé à différents analytes peuvent être calculées efficacement à partir d'équations paramétriques ne contenant que les descripteurs des analytes (figure 3). La prédiction de réponses provenant de plusieurs matériaux est en revanche plus délicate et aucun modèle n'est disponible dans la littérature.

Les mesures par RMN réalisées sur des mélanges ont servi à valider et paramétrer l'approche théorique de Hansen pour le calcul de ΔG_{mix}. On obtient ainsi une restitution globale satisfaisante des réponses relatives d'un large panel de composés (figure 3).

Conclusions

Une méthode RMN originale de détermination des énergies d'interaction intermoléculaire a permis de valider le calcul de l'enthalpie de mélange de deux composés par la théorie de Hansen. Ce paramètre conditionne la sélectivité de la capacité d'adsorption d'un matériau sensible. Il a servi de base pour construire le premier modèle multi-matériau de prédiction des réponses à l'équilibre de capteurs chimiques. Compte tenu des cinétiques d'adsorption au regard des contraintes opérationnelles de temps, la mesure n'est pas réalisée jusqu'à atteinte de l'équilibre. Elle peut alors être extrapolée au moyen d'une loi de diffusion de Fick.

RÉFÉRENCES

[1] **L. HAIRAULT, E. PASQUINET, B. LEBRET,** « Utilisation de polymères ou de composites à base de siloxanes dans des capteurs chimiques pour la détection de composés nitrés », *Brevet FR 03*, 50984 (2003).

[2] **J. KLINGENFUS, P. PALMAS,** « Weak molecular associations investigated by ¹H-NMR spectroscopy on a neat organosiloxane–solvent mixture», *Phys. Chem. Chem. Phys.*, **13** (22), p. 10661-10669 (2011).

[3] **E. F. MOONEY,** *Annual review of NMR Spectroscopy*, Academic Press, London & New York (1969).

[4] **A. HIERLEMANN, E. T. ZELLERS, A. J. RICCO,** "Use of Linear Solvation Energy Relationships for Modeling Responses from Polymer-Coated Acoustic-Wave Vapor Sensors", *Anal. Chem.*, **73**, p. 3458-3466 (2 001).

« Meritorious paper award » RADECS

→ **Mélanie Raine, Marc Gaillardin, Philippe Paillet, Sylvain Girard et Jean-Etienne Sauvestre** du CEA/DAM - Île-de-France ont obtenu ce prix qui a distingué leur article « Impact of the radial ionization profile on SEE prediction for SOI transistors and SRAMs beyond the 32 nm technological node » parmi les trois meilleurs papiers de la conférence Radecs (« RADiation and its Effects on Components and Systems »). Ce travail, réalisé en collaboration avec l'ONERA, montre la nécessité de prendre en compte la dimension radiale de la trace d'ionisation des ions lourds pour la prédiction de la sensibilité aux aléas logiques de technologies microélectroniques fortement intégrées. Il contribue à améliorer la méthodologie de simulation utilisée pour prédire le comportement des composants électroniques en environnement radiatif.

« Paul Phelps Award »

→ **Mélanie Raine**, doctorante au CEA/DAM - Île-de-France a reçu le « Paul Phelps Award » délivré par l'IEEE NPSS (Nuclear and Plasma Science Society), qui couronne chaque année les étudiants les plus prometteurs dans ce domaine. Elle a étudié la sensibilité aux radiations des composants électroniques avancés et plus particulièrement l'influence de l'énergie des ions lourds sur les perturbations induites dans les composants et circuits très intégrés.

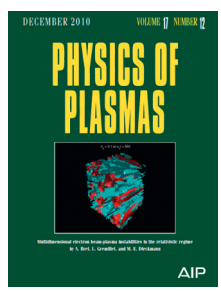
Prix du meilleur poster

→ **S. Spelleman, C. Huber, J. Lachot et G. Batifol** du centre de Valduc, ont reçu le prix du meilleur poster à l'occasion du congrès NUWCEM 2011, Symposium on Cement-based Materials for Nuclear Wastes qui s'est déroulé en octobre 2011 en Avignon. Le poster intitulé « A mixing device for nuclear liquid effluents immobilization in a cement-waste form » présentait le développement technologique d'un malaxeur permettant l'enrobage dans une matrice cimentaire d'effluents radioactifs directement dans le fût destiné au stockage définitif des déchets. Cette technologie permet de gagner en compacité pour l'installation industrielle, autorise une maintenance complète sans aucune opération de démantèlement, et réduit la quantité d'effluents de lavage. Elle sera mise en œuvre en boîte à gants, à l'occasion du remplacement du malaxeur existant CMOI.

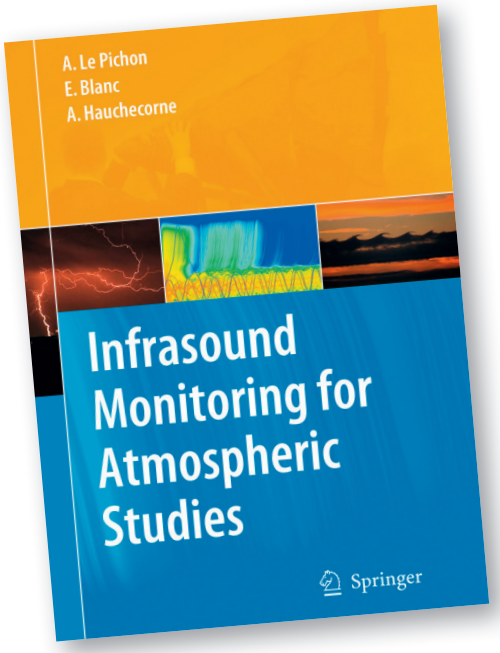
Prix du meilleur article étudiant

→ Lors de la 9e édition de l'ICNC (International Conference on Nuclear Criticality),conférence qui rassemble tous les quatre ans les spécialistes en neutronique et criticité issus du monde entier (USA, France, Japon, Royaume-Uni), **Benoît Richard**, doctorant au CEA - Valduc, s'est vu notamment décerner le prix du meilleur article étudiant pour son travail intitulé "Neutron noise measurements on fast burst reactor CALIBAN - Determination of the core kinetic parameters". Dans le contexte actuel marqué par la catastrophe de Fukushima, le comité a conclu sur la nécessité du maintien d'un potentiel de moyens techniques et de compétences scientifiques dans le domaine de la sûreté-criticité et de la neutronique expérimentale.

Distinction d'un article dans la revue *Physics of Plasmas*



→ L'article de A. Bret, **L. Gremillet** (CEA/DAM - Île-de-France) et M. E. Dieckmann intitulé « Multidimensional electron beam-plasma instabilities in the relativistic regime » a fait la couverture du n°17(12) de la revue *Physics of Plasmas* publié toute fin 2010.



Infrasound Monitoring for Atmospheric Studies

Éditeurs : **Alexis Le Pichon, Elisabeth Blanc** (CEA/ DAM - Île-de-France), Alain Hauchecorne (LATMOS)

Éditions Springer Science

ISBN: 978-1-4020-9507-8, 735 pages

La science des ondes acoustiques basse fréquence (infrasons), s'est développée en un vaste champ interdisciplinaire englobant des axes de recherche universitaires en physique et les dernières évolutions techniques et scientifiques. Le réseau infrasonore de surveillance internationale (SSI) du TICE a démontré sa capacité à détecter et localiser des sources d'infrasons comme les météorites, les éruptions volcaniques, les tremblements de terre, les aurores boréales, et les ondes associées aux montagnes ... Près de 70% du réseau mondial est maintenant opérationnel et des réseaux régionaux denses sont maintenant déployés autour du globe. L'exploitation routinière et systématique des signaux acoustiques basse fréquence a mis en évidence un potentiel sans précédent du fait de la détection d'ondes infrasonores permanentes générée par des événements naturels et artificiels. Par ailleurs, des études récentes soulignent de nouvelles perspectives sur les relations quantitatives entre les observables et les modèles atmosphériques, ce qui ouvre de nouveaux champs de recherche associant mathématiques et géophysique pour l'amélioration des problèmes inverses posé par la télédétection atmosphérique. Ce volume regroupe les travaux les plus significatifs dans le domaine des infrasons, en mettant l'accent sur les dernières recherches et applications en la matière comme par exemple, l'instrumentation, l'ingénierie, le traitement du signal, la surveillance des sources, la modélisation de la propagation, la dynamique atmosphérique, les changements globaux, et les méthodes de télédétection. Les chercheurs et les étudiants bénéficieront ainsi d'un contenu exhaustif, où les sujets à la fois fondamentaux et appliqués sont discutés par des auteurs impliqués dans les institutions internationales, tous experts dans leurs domaines.

De la mécanique générale au discontinu - Approche unifiée de l'élasticité

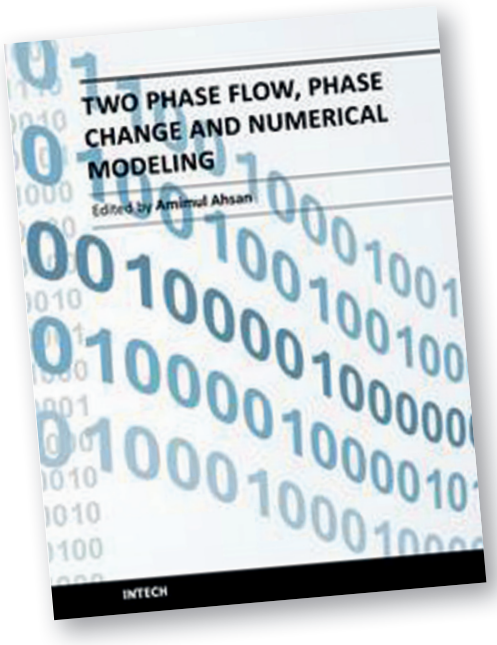
Par **C. Mariotti** (CEA/DAM – Île-de-France) et L. Monasse (ENPC/CERMICS)

Éditions Presses de l'école nationale des Ponts et Chaussées (ENPC)

ISBN : 978-2-85978-460-7, 352 pages

Cet ouvrage présente un modèle mathématique complet du modèle d'Éléments Discrets. Une formulation explicite des propriétés entre grains à partir de la géométrie du contact permet de restituer exactement l'élasticité. Le modèle est ainsi développé en 2D plan, 2D axisymétrique et 3D avec un schéma spécifique pour traiter les rotations. Cette approche permet d'unifier la Mécanique Générale traitant la cinématique d'un solide et la Mécanique des Milieux Continus formulant la déformation. Le même formalisme permet alors de traiter aussi bien la propagation des ondes sismiques que des coques en grands déplacements et grandes rotations. De nombreux tests de vérification sont présentés qui illustrent les potentialités de cette approche.

LIVRES PARUS EN 2011



Two Phase Flow, Phase Change and Numerical Modeling

Éditeur : **Dr. Amimul Ashan**

Éditions INTECH Open Acces Publisher

ISBN 978-953-307-584-6, 584 pages

Avec la contribution de **S. Reyné** (CEA – CESTA), L. Lamaignère, J-Y. Natoli et **G. Duchateau** (CEA – Le Ripault) pour le chapitre 10 intitulé "Thermal approaches to interpret laser damage experiments".

This chapter presents an overview of the LID (Laser-induced damage) in KDP when illuminated by a nanosecond laser beam. A review of the thermal approaches which have been developed over the last ten years is proposed. In Section 2, a description of two models including the heat transfer in defects of sub-micrometric size is carried out. We first propose a description of the DMT (Drude - Mie - Thermal) model which considers the incident laser energy absorption by a plasma ball (i.e. an absorbing zone), that may lead to a damage. Then, we describe a model coupling statistics and heat transfer which indicates that LID may be induced by the thermal cooperation of point defects.
These two models are based on the resolution of the standard Fourier's equation where the features of the model under considerations are included. Also, the damage occurrence is determined according to a criterion defined by a critical temperature, which corresponds to the temperature reached by the defect to induce a damage site.
The previous models account for most of the classical results and trends on KDP LID published in the literature. In Section 3, some applications of these models are presented to interpret several sets of new experimental results. To interpret these new results, these thermal models have been adapted. First in the mono-wavelength case, it is shown that the DMT model accounts for the influence of the crystal orientation on the LID by considering defects with an ellipsoid geometry. Then, when a KDP crystal is illuminated by two different wavelengths at the same time, it exists a coupling effect between the wavelengths that induces a drastic drop in the laser damage resistance of the component. The model then addresses the resolution of the Fourier's equation by taking into account the presence of two wavelengths at the same time.

SOUTENANCE HDR EN 2011

Habilitations à diriger des recherches

Didier Bénisti

CEA/DAM - Île-de-France

« Field-matter interaction in atomic and plasma physics, from fluctuations to the strongly nonlinear regime. »

Éric Bauge

CEA/DAM - Île-de-France

« La physique nucléaire de la théorie aux applications ; des ponts entre la physique microscopique et la physique appliquée. »

Sophie Péru

CEA/DAM - Île-de-France

« Études théoriques de la structure nucléaire au-delà de l'approximation du champ moyen. »

Pierre-Henri Maire

CEA – CESTA

« Contribution à la modélisation numérique de la fusion par confinement inertiel. »

Emmanuel Hugonnot

CEA – CESTA

« Amplification d'impulsions nanosecondes et femtosecondes pour les pilotes et chaînes laser de puissance. »

PROCHAINEMENT

La rédaction édite un nouveau numéro de sa revue *Focus* célébrant **les 10 ans de collaboration de l'Accord CEA/DAM - DOE/NNSA.**

Pour commander ce recueil, s'adresser par courrier électronique à : **chocs@cea.fr**

DE LA RECHERCHE À L'INDUSTRIE

cea

Direction
des applications militaires

www-dam.cea.fr