

DE LA RECHERCHE À L'INDUSTRIE



SOMMAIRE

ÉDITORIAL

02 T. MASSARD

INTERACTION LASER-MATIÈRE

- **O4** Mise en forme spatiale entièrement fibrée E. HUGONNOT, P. CALVET, C. VALENTIN, G. BOUWMANS, Y. QUIQUEMPOIS, L. BIGOT, A. MUSSOT, M. DOUAY
- **Dynamique sub-seconde d'une surface d'aluminium lors d'une transition solide-liquide induite par laser** C. FOURMENT, F. DENEUVILLE, B. CHIMIER, D. DESCAMPS, F. DORCHIES, O. PEYRUSSE, P. COMBIS, L. VIDEAU

.....

PHYSIQUE DES PLASMAS & ÉLECTROMAGNÉTISME

- O8 Métallisation du plastique dopé au germanium G. HUSER, V. RECOULES, G. SALIN, D. GALMICHE, N. OZAKI, K. MIYANISHI, R. KODAMA, T. SANO, Y. SAKAWA
- **Nouveaux mécanismes d'injection pour les accélérateurs laser-plasma** X. DAVOINE, S. CORDE, R. LEHE, C. THAURY
- 12 Le Γ-plateau J. Clérouin, P. Arnault, G. Robert, C. Ticknor, L. Collins, J. Kress

PHYSIQUE DE LA MATIÈRE CONDENSÉE

14 La température du noyau de la Terre réévaluée A. DEWAELE, S. ANZELLINI, P. LOUBEYRE, M. MEZOUAR, G. MORARD

PHYSIQUE NUCLÉAIRE

16 Un nouveau mode de fission éclaire l'origine cosmique des terres rares S. HILAIRE, N. DUBRAY, J.-F. LEMAÎTRE, J.-L. SIDA, S. PANEBIANCO, S. GORIELY, A. BAUSWEIN, H.-T. JANKA

PHYSIQUE DE L'ATMOSPHÈRE

18 La météorite de Chelyabinsk: l'événement le plus puissant jamais enregistré par le réseau international de surveillance A. LE PICHON, N. BRACHET, P. HERRY, J. ASSINK

INSTRUMENTATION & MÉTROLOGIE

20 Spéciation de l'uranium dans des particules micrométriques F. POINTURIER, O. MARIE

- 22 Détection électrochimique du nitrométhane pour un détecteur de traces d'explosifs S. DELILE, T. MAILLOU, P. PALMAS, V. LAIR, M. CASSIR
- 24 Mesures de vitesse de détonation au sein de matériaux énergétiques A. LEFRANÇOIS, J. LUC, P. DELCOR, M. GENETIER, Y. BARBARIN, S. MAGNE, G. LAFFONT, P. FERDINAND
- Compression isentropique sur SPHINX T. D'ALMEIDA, F. LASSALLE, A. MORELL, J. GRUNENWALD, F. ZUCCHINI, A. LOYEN, A. CHUVATIN

SCIENCE DES MATÉRIAUX

- $\begin{array}{c} \textbf{28} \quad \begin{array}{l} \textbf{Élucidation du comportement en température d'un alliage} \\ \textbf{de Pu en phase } \delta \textbf{ en limite de métastabilité} \\ \textbf{B. RAVAT, B. OUDOT, F. LALIRE, A. PERRON, F. DELAUNAY} \end{array}$
- **30** Explosifs comprimés : comportement plastique du HMX J. VIAL, D. PICART, P. BAILLY, F. DELVARE
- **32** Un mode de vortex dans des pétales ferromagnétiques J. NEIGE, T. LEPETIT, N. MALLEJAC, A.-L. ADENOT ENGELVIN, A. THIAVILLE, N. VUKADINOVIC
- 34 Élaboration de composites carbone/carbone denses A. DEKEYREL, M.-A. DOURGES, R. PAILLER, A. ALLEMAND, P. DAVID
- 36 Nanoparticules de platine supportées sur carbone: catalyseur pour pile à combustible A. ALLEMAND, P. DAVID, A. DEKEYREL, M.-A. DOURGES, R. PAILLER
- **38** Transport de charges dans un électrolyte solide pour piles à combustible : apports des simulations multi-échelle J. HERMET, F. BOTTIN, M. TORRENT, G. GENESTE, G. DEZANNEAU
- 40 Impacts hypervéloces sur du graphite : expériences et simulations D. HÉBERT, G. SEISSON, I. BERTRON, J.-M. CHEVALIER, L. HALLO.
 - D. HEBERT, G. SEISSON, I. BERTRON, J.-M. CHEVALIER, L. HALLO, L. VIDEAU, P. COMBIS, F. GUILLET, M. BOUSTIE, L. BERTHE
- 42 Essai d'adhérence d'assemblages de composites à l'aide de rampes de compression dynamique E. BUZAUD, P.-Y. CHANAL, E. GAY, L. BERTHE, M. BOUSTIE, M. ARRIGONI

CALCUL NUMÉRIQUE

- 44 Une nouvelle méthode de contact-glissement pour les schémas lagrangiens en énergie totale E. LABOURASSE, S. DEL PINO, G. CLAIR, B. DESPRÉS
- 46 Un multi-grille parallèle pour Maxwell harmonique J. PESQUÉ, D. GOUDIN, M. CHANAUD, L. GIRAUD, J. ROMAN

PRIX ET DISTINCTIONS, LIVRES PARUS, HDR



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

Rédacteur en chef: Michel BOIVINEAU

Commissariat à l'énergie atomique et aux énergies alternatives

Chocs Avancées 2013, Avancées scientifiques et techniques de la Direction des applications militaires.

Image de couverture: Simulation d'un plasma détendu de silice SiO₂ à 10000K (silicium: vert, oxygène: bleu) – ©/CEA/DAM

Directeur de la publication : Thierry MASSARD. Coordinateur scientifique: Jean-François CLOUET. Comité scientifique: Daniel BOUCHE, Pierre BRUGUIÈRE, Jacques CAGNOUX, Catherine CHERFILS, Jean CLÉROUIN, Jean-François CLOUET, Gilles DAMAMME, Patrick DAVID, Philippe DUVIGNAC, Francis HARDOUIN, Denis JURASZEK, Christophe LELOUP, Stéphane LOUBIÈRE, Daniel MALYS, Christophe MOULIN, Bruno SCHEURER, Philippe SIMONETTI.

Création et réalisation: EFIL/www.efil.fr. Impression: Graphival, Ballan-Miré. Secrétariat, diffusion et abonnement: Régis VIZET.

Brochure imprimée sur papier écogéré ISSN 1961-7399

.....

ÉDITORIAL



THIERRY MASSARD Directeur scientifique de la Direction des applications militaires du CEA

Matériaux et numérique: chimère ou promesse ?

Le développement de nouveaux matériaux innovants est essentiel pour les défis du XXI^e siècle que nous aurons à relever dans le domaine de la défense, de la sécurité, de l'énergie, de l'environnement, de la santé ou encore de la mobilité. C'est pourquoi la science des matériaux est plus que jamais un domaine clé pour les années à venir. Les matériaux sont au croisement de champs interdisciplinaires qui vont des sciences les plus fondamentales aux technologies appliquées des sciences de l'ingénieur. C'est ce qui en fait toute la difficulté lorsque l'on veut aborder la simulation des matériaux dans sa globalité et dans tous ses détails.

La connaissance fine par la simulation des matériaux croise des techniques aussi différentes que les calculs *ab initio*, la dynamique moléculaire, la modélisation multi-échelle et la simulation numérique des processus d'élaboration, sans oublier les nanotechnologies. Pour simuler les matériaux, il faut des capacités de calculs toujours plus importantes permettant de décrire les propriétés structurales, électroniques et dynamiques des matériaux, de la dynamique moléculaire quantique jusqu'à la mécanique des milieux continus. Grâce au caractère prédictif de ces méthodes il est possible d'explorer la matière et d'étudier les propriétés effectives dans des conditions extrêmes difficilement accessibles à l'expérience. Ainsi, les astrophysiciens peuvent maintenant connaître avec précision l'équation d'état du fer au centre de la terre ou de celle de l'hydrogène sur Jupiter !

Plus encore, avec la conception virtuelle, il est désormais envisageable de proposer des matériaux nouveaux et innovants dans un atelier numérique virtuel avant même de les avoir synthétisés en laboratoire. À ce titre, il est à souligner que les premières journées consacrées aux matériaux numériques ont été créées et organisées par le centre du Ripault en 2013.

Cette nouvelle approche de la conception des matériaux promet d'éviter de longs et hasardeux prototypes et expérimentations dans les laboratoires réels. Il est possible alors de réduire de



Observation au microscope électronique à balayage (MEB) d'un dépôt métallique en or sur un tapis de nanotubes de carbone (a) et représentation numérique 3D de cette même structure sur la base du cliché MEB (b,c). © Université d'Orléans/GREMI (a) et CEA Le Ripault (b,c)

façon drastique à la fois le coût et le temps de développement des nouveaux matériaux grâce à la simulation numérique.

La DAM a inscrit dans ses programmes cette priorité. Forte d'une longue expérience dans la simulation des matériaux complexes soumis à des environnements extrêmes, elle s'est dotée d'une capacité unique alliant à la fois les capacités de calcul haute performance pour la simulation et les moyens uniques de caractérisation de la matière en conditions extrêmes. Vous en trouverez quelques éléments à la lecture de ce numéro d'Avancées 2013.

Il reste à mettre en œuvre ces méthodes à une échelle permettant à l'industrie de renforcer sa compétitivité dans le domaine des matériaux. Une limitation majeure des méthodes *ab initio* est leur coût informatique. La formidable capacité des grands ordinateurs du Centre de calcul recherche et technologie (CCRT) du CEA/DAM Île-de-France, dont nous venons de fêter les dix ans, donne aujourd'hui un sens à cette ambition.

Avancées est la revue des publications du CEA/DAM. Chaque année elle propose, à travers une sélection des meilleures d'entre elles, de

parcourir les domaines de recherche qui ont été mis en avant au cours de l'année écoulée dans les revues internationales de haut niveau. Avec près de 500 publications chaque année, la DAM, malgré toutes les contraintes de confidentialité liées à son activité, contribue au rayonnement scientifique du CEA, apportant une image d'une Direction fortement ancrée dans la communauté scientifique française. Elle prouve que son niveau scientifique progresse dans de nombreux domaines, ce qui lui permet de relever les défis auxquels elle doit faire face pour maintenir la crédibilité des armes de la dissuasion.

Bien évidemment Avancées 2013 ne se résume pas à la science des matériaux. Cette année encore vous trouverez dans ces pages des sujets aussi divers que la physique des lasers, l'environnement ou encore la simulation numérique des phénomènes physiques et l'instrumentation la plus fine, représentant bien la grande diversité des talents qui s'expriment au sein de la DAM.

Mise en forme spatiale entièrement fibrée

E. HUGONNOT - P. CALVET / CEA – Cesta

C. VALENTIN - G. BOUWMANS - Y. QUIQUEMPOIS - L. BIGOT - A. MUSSOT - M. DOUAY / Laboratoire de physique des lasers, atomes et molécules, UMR 8523 – Institut de recherche sur les composants logiciels et matériels pour l'information et la communication avancée, USR CNRS 3380, Villeneuve d'Ascq

Certaines applications laser telles que le micro-usinage (ablation, lithographie, gravure...) ou l'injection de chaînes de puissance comme le Laser Mégajoule (LMJ), réclament un faisceau laser de profil spatial uniforme. Un tel profil est généralement obtenu en utilisant des optiques de mise en forme spatiale relativement onéreuses, complexes à aligner et peu compactes. Dans l'objectif de l'amélioration de la fiabilité des systèmes actuels, une solution élégante et efficace consiste à effectuer la mise en forme spatiale non plus en espace libre, mais à l'intérieur d'une fibre optique. Nous avons donc récemment réalisé une fibre microstructurée dont le mode fondamental est de forme spatiale aplatie. Ce travail représente un grand pas en avant vers la réalisation de systèmes modulaires de forte énergie entièrement fibrés.

es pilotes des installations lasers de puissance telles que le LMJ comprennent beaucoup de composants car ils doivent assurer de nombreuses fonctions: génération du faisceau, amplification avec un très fort gain, mises en forme spatiale, spectrale et temporelle, etc. Le trajet optique est ainsi très grand malgré la dimension modeste des pilotes au regard du reste de la chaîne. Afin de fiabiliser les pilotes, une solution intéressante est d'augmenter la part des fibres dans l'architecture au détriment de la part espace libre. Ceci est rendu possible par les progrès importants réalisés ces dernières années en matière d'énergie et puissance transportées dans les fibres optiques. Ainsi, avec les fibres, on peut améliorer l'exploitabilité des pilotes (compacité, facilité d'utilisation, stabilité), disposer d'architectures modulaires et faciliter l'alignement et les réglages.

Une fonction primordiale des pilotes est la mise en forme spatiale (MFS) du faisceau assurant une répar-

tition spatiale de la lumière laser la plus homogène possible. Dans les pilotes actuels, cette fonction est assurée par l'utilisation de miroirs de phase placés dans le premier étage d'amplification en espace libre qui transforment un faisceau gaussien en un faisceau aplati. Dans l'objectif de remplacer ce premier étage d'amplification par un système tout fibré, il est donc essentiel de parvenir à réaliser la fonction MFS dans une fibre optique.

Une solution élégante et efficace consiste alors à réaliser une fibre optique dont le mode de propagation ne soit pas de forme spatiale quasi gaussienne comme c'est le cas habituellement, mais plutôt de forme aplatie. Une telle exigence est rendue possible grâce à la technologie récente des fibres microstructurées qui permet de modifier les propriétés de propagation de la lumière en réalisant une structuration de la gaine entourant le cœur des fibres optiques. Des exemples de design de fibres optiques permettant



d'aplatir la distribution d'intensité du cœur optique ont ainsi été précédemment proposés dans la littérature, mais, jusqu'à présent, les résultats étaient uniquement numériques à l'exception d'un seul exemple de réalisation. Celui-ci avait donné des résultats relativement décevants, notamment du fait que d'autres modes que le mode fondamental pouvaient se propager, ce qui dégradait considérablement la qualité spatiale du faisceau [1].

Afin de résoudre ce problème, nous avons donc récemment proposé un design de fibre optique (figure 1) permettant non seulement d'obtenir un mode fondamental aplati à une longueur d'onde donnée $\lambda_0 \approx 1 \mu m$, mais également ne guidant que ce seul mode. Le point clef consiste à disposer une couronne de haut indice ($\delta n_{couronne}$) et de faible épaisseur entre le cœur et la gaine de la fibre. Afin de comprendre le phénomène permettant l'aplatissement du mode, l'évolution schématique de l'indice effectif de la structure est donnée sur la figure 2. À courte longueur d'onde (typiquement $\lambda \leq 0.5 \,\mu\text{m}$) l'indice effectif est celui de l'anneau et le mode obtenu est de forme annulaire. À grande longueur d'onde (typiquement $\lambda \ge 1,5 \mu m$), la lumière ne distingue plus l'anneau et le profil est gaussien. Lorsque l'indice effectif est égal à l'indice du cœur, on se trouve dans un cas intermédiaire, et le mode aplati désiré est alors obtenu sur une plage de longueur d'onde d'environ une centaine de nm autour de λ_0 . Des paramètres adéquats de la microstructure de la gaine (réseaux de trous de taille et de pas contrôlés) permettent ensuite de supprimer les modes d'ordre supérieurs indésirables et donc de ne conserver que le mode fondamental aplati. On peut d'ailleurs montrer qu'il est plus avantageux de réaliser le cœur avec une silice d'indice plus faible $(\delta n_{cœur})$ que celle utilisée pour la gaine car cela permet d'obtenir des conditions plus facilement réalisables en pratique [2].

Une fibre basée sur ce design et d'environ 20 µm de diamètre de cœur a alors été réalisée. La **figure 3a** montre une coupe transverse de la fibre prise en



Figure 2. Évolution schématique de l'indice effectif du mode fondamental et de la répartition spatiale de son intensité en fonction de la longueur d'onde.



Figure 3. (a): Profil transverse de la fibre réalisée – (b): Répartition spatiale de l'intensité du faisceau obtenu en sortie de fibre.

microscopie électronique. Nous avons pu vérifier que la fibre obtenue est réellement monomode et nous l'avons alors intégrée dans un amplificateur laser entièrement fibré injecté dans des conditions proches de celles des pilotes LMJ. Le profil spatial obtenu à la longueur d'onde $\lambda_0 \approx 1,053 \ \mu m$ et pour une énergie de plus de 100 µJ est présenté sur la figure 3b. Comme on peut le voir, celui-ci est d'excellente qualité et représente clairement une étape importante vers la réalisation de systèmes entièrement fibrés de forte énergie compatibles avec les besoins des pilotes de chaînes laser de puissance. De plus, ce nouveau concept de fibres peut également être utilisé pour de nombreuses applications réclamant un éclairement uniforme (micro-usinage laser, interaction lumière-matière, etc.).

Références

[1] J. W. DAWSON, R. J. BEACH, I. JOVANOVIC, B. WATTELIER, Z. M. LIAO, S. A. PAYNE, C. P. J. BARTY, "Large flattened mode optical fiber for reduction of non-linear effects in optical fiber lasers", *Proc. SPIE*, San Jose, January 25, **5335**, p. 132-139 (2004).

 [2] C. VALENTIN, P. CALVET, Y. QUIQUEMPOIS, G. BOUWMANS,
 L. BIGOT, Q. COULOMBIER, M. DOUAY, K. DELPLACE, A. MUSSOT,
 E. HUGONNOT, "Top-hat beam output of a single-mode microstructured optical fiber: key role of core index depression", *Opt. Express*, 21, 23250 (2013).

Dynamique sub-picoseconde d'une surface d'aluminium lors d'une transition solide-liquide induite par laser

C. FOURMENT - F. DENEUVILLE - B. CHIMIER - D. DESCAMPS - F. DORCHIES - O. PEYRUSSE / Centre lasers intenses et applications (CELIA), UMR 5107 CNRS–CEA–Université de Bordeaux, Talence P. COMBIS - L. VIDEAU / CEA – DAM Île-de-France

La position d'une surface d'aluminium suivant son chauffage par une impulsion laser ultracourte a été mesurée avec une précision nanométrique et une résolution temporelle de l'ordre de 50 femtosecondes (10⁻¹⁵ s). La méthode expérimentale repose sur l'interféro-polarimétrie d'un faisceau sonde en réflexion sur la surface étudiée. Les mesures montrent un excellent accord avec le code hydrodynamique 1D ESTHER lorsque l'on décrit correctement la couche d'oxyde d'aluminium présente à la surface de la cible. L'expérience permet en outre la mesure des propriétés optiques (fonction diélectrique) de l'aluminium au cours de sa relaxation après le chauffage. Nous avons ainsi pu caractériser la propagation de l'onde de raréfaction sous la surface d'aluminium.

ocaliser une impulsion laser ultracourte (subpicoseconde, < 10⁻¹² s) à la surface d'un solide est un moyen simple d'amener la matière dans le domaine des plasmas denses dégénérés et corrélés, possédant une haute densité d'énergie. Du fait de la pression très élevée, la matière subit une détente hydrodynamique très rapide, sur une échelle de temps de l'ordre de la picoseconde. La caractérisation de cette détente est nécessaire pour connaître les conditions thermodynamiques du matériau étudié et les voies de relaxation de l'énergie. Cependant, sa rapidité intrinsèque, mise à profit par exemple pour réaliser des découpes de précision (femto-usinage, chirurgie ophtalmique), pose des contraintes fortes sur la résolution temporelle du diagnostic utilisé, qui doit être meilleure que la picoseconde. Ceci interdit l'emploi des diagnostics usuels comme le VISAR [1].

De plus, à cette échelle de temps, le déplacement de la surface est nanométrique, ce qui impose une très grande sensibilité que ne possèdent pas l'ombroscopie ou la radiographie.

Nous avons pu répondre à toutes ces contraintes en réalisant un dispositif d'interférométrie dans le domaine des fréquences (FDI) [2]. Il consiste à mesurer les variations en amplitude et en phase d'une impulsion laser femtoseconde servant de sonde, lors de sa réflexion sur une surface excitée par une autre impulsion laser (pompe), simultanément dans deux directions de polarisation [3]. L'évolution au cours du temps est obtenue en répétant la mesure à différents délais entre la pompe et la sonde. L'utilisation d'un laser à haut taux de répétition (1 kHz) permet une grande reproductibilité des tirs (variations de l'ordre de 1 % en énergie et durée), et un rapport signal



Figure 1.

(a): position de la surface d'aluminium au cours du temps pour une fluence excitatrice de 1 J/cm².
(b): densité électronique effective dans l'épaisseur sondée (points expérimentaux), comparée à celle de la simulation dans une maille initialement située 10 nm sous la surface d'aluminium. à bruit élevé. L'échantillon étudié est une feuille d'aluminium de 300 nm d'épaisseur déposée sur un substrat en verre. L'impulsion pompe (30 fs, 800 nm) est focalisée dans une tache de 48 µm de largeur à mi-hauteur sur la surface d'aluminium, avec une fluence réglable autour de 1 J/cm². En pratique, une surface d'aluminium est très souvent oxydée. Nous avons mesuré par ellipsométrie la présence d'une couche de 10 nm d'oxyde Al₂O₃ sur nos échantillons. Dans nos conditions expérimentales, cette couche est complètement transparente et ne perturbe pas la mesure, mais nous avons montré qu'elle influence significativement l'évolution hydrodynamique de la cible. Celle-ci est mesurée à partir de la comparaison des données recueillies dans chaque direction de polarisation, qui permet de séparer l'évolution des propriétés optiques du matériau d'une part, et la détente hydrodynamique d'autre part [3,4]. Nous avons pu ainsi mesurer la «raideur» de la surface étudiée (caractérisée par une longueur de gradient de densité électronique) ainsi que sa position avec une précision de 1 nm et une résolution temporelle de 50 fs, pour deux fluences d'excitation : 0,5 J/cm² et 1 J/cm². Dans les deux cas, la surface d'aluminium reste très raide (longueur de gradient inférieure à 1 nm) pendant toute la durée observée (40 ps). D'autre part, la surface se déplace vers le vide à une vitesse de l'ordre de 1 nm/ps croissante avec la fluence excitatrice, et subit un ralentissement après quelques picosecondes.

La confrontation de nos observations avec des simulations du code hydrodynamique à deux températures ESTHER [5] montre le rôle de la couche d'oxyde en surface de l'échantillon. En effet, pour la fluence de 1 J/cm², la pression électronique dans l'aluminium est telle que sans la couche d'oxyde, la surface devrait perdre sa cohésion et un gradient de densité de plusieurs nanomètres s'établir en moins d'une picoseconde. Du fait de son inertie, la couche d'oxyde empêche la formation de ce gradient, en accord avec l'observation. De même, le ralentissement de l'expansion de la surface après quelques picosecondes est reproduit en tenant compte de la résistance mécanique qu'oppose la couche d'oxyde à la déformation qui accompagne le déplacement de la surface (effet de membrane). Moyennant l'ajout dans ESTHER d'un module pour décrire cet effet, l'accord avec l'expérience est remarquable (figure 1a) [4]. L'analyse des propriétés optiques de la surface d'aluminium, également mesurées par notre dispositif, apporte des informations supplémentaires sur le matériau après son excitation, comme ses densités électronique et massique. Ceci nous a permis de confirmer la validité de la simulation ESTHER sur plusieurs observables (figure 1b) [4], et de décrire le scénario de la relaxation de l'énergie dans cette expérience : le couplage électron-ion élevé entraîne la liquéfaction de l'aluminium à la densité du solide,

en moins de 1 ps, sur une profondeur de plusieurs dizaines de nanomètres, tandis que la relaxation de la pression se traduit par la propagation d'une onde de raréfaction à partir de la surface de la cible (figure 2) [4].

Ce travail nous a donc permis de réaliser et de qualifier un « VISAR femtoseconde », adapté à l'observation du mouvement des surfaces sur des échelles de temps extrêmement brèves et qui sera utilisé pour observer des transitions de phases hors équilibre dans le contexte de l'étude de la matière dense et tiède, et de l'endommagement par rayonnement.



Figure 2. Schéma de la propagation de l'onde de raréfaction. *Par conservation de la masse*, $\rho_{l'}(\nu_1 + \nu_2) = \rho_s.\nu_2$.

Références

[1] P. M. CELLIERS, D. K. BRADLEY, G. W. COLLINS, D. G. HICKS, T. R. BOEHLY, W. J. ARMSTRONG, "Line-imaging velocimeter for shock diagnostics at the OMEGA laser facility", *Rev. Sci. Instr.*, 75, p. 4916-4929 (2004).

[2] J. P. GEINDRE, P. AUDEBERT, A. ROUSSE, F. FALLIES, J. C. GAUTHIER, A. MYSYROWICZ, A. D. SANTOS, G. HAMONIAUX, A. ANTONETTI, "Frequency-domain interferometer for measuring the phase and amplitude of a femtosecond pulse probing a laserproduced plasma", *Opt. Lett.*, **19**, p. 1997-1999 (1994).

[3] F. DENEUVILLE, B. CHIMIER, D. DESCAMPS, F. DORCHIES, S. HULIN, S. PETIT, O. PEYRUSSE, J. J. SANTOS, C. FOURMENT, "Sub-picosecond and nanometer scale dynamics of aluminum target surface heated by ultrashort laser pulse", *Appl. Phys. Lett.*, **102**, 194104 (2013).

[4] C. FOURMENT, F. DENEUVILLE, B. CHIMIER, D. DESCAMPS, F. DORCHIES, S. HULIN, S. PETIT, O. PEYRUSSE, J. J. SANTOS, "An interferometric diagnostic for the experimental study of dynamics of solids exposed to intense and ultrashort radiation", *SPIE Conf. Series*, 8777 (2013).

[5] J.-P. COLOMBIER, P. COMBIS, F. BONNEAU, R. LE HARZIC, E. AUDOUARD, ""Hydrodynamic simulations of metal ablation by femtosecond laser irradiation", *Phys. Rev. B*, **71**, 165406 (2005).

Métallisation du plastique dopé au germanium

G. HUSER - V. RECOULES - G. SALIN - D. GALMICHE / CEA – DAM Île-de-France

N. OZAKI - K. MIYANISHI - R. KODAMA / Graduate School of Engineering, Université d'Osaka, Japon

T. SANO - Y. SAKAWA / Institute of Laser Engineering, Université d'Osaka, Japon

Le plastique dopé au germanium est l'un des matériaux utilisé dans les capsules de fusion par confinement inertiel (FCI). Ses propriétés ont besoin d'être connues avec une grande précision pour obtenir des implosions performantes sur le Laser Mégajoule (LMJ). Par ailleurs, les plastiques dopés sont des mélanges complexes : leur description théorique dans une vaste gamme de conditions thermodynamiques nécessite une validation expérimentale. Au cours d'expériences menées en collaboration avec l'université d'Osaka, nous avons validé les modèles utilisés pour décrire la compressibilité de ces matériaux. En revanche, la métallisation prédite par les modèles courants est surestimée.

A tteindre l'allumage thermonucléaire requiert une grande précision sur la connaissance des modèles d'équation d'état et d'ionisation. Ces derniers influent directement sur la chronométrie des chocs, l'absorption du rayonnement d'attaque, ainsi que sur le développement des instabilités hydrodynamiques [1].

Le dimensionnement des capsules LMJ repose sur la validation expérimentale. Cette étape de validation se fait à plusieurs échelles: à l'échelle 10 kilojoules (installations LIL au CESTA, Omega à l'université de Rochester), sont menées des expé-

Figure 1. Image VISAR. Le choc créé par laser se propage dans un matériau pousseur avant d'être transmis dans une couche de quartz. Lorsque le choc est transmis du quartz au CH(Ge), la vitesse du choc est modifiée par désadaptation d'impédance et un décalage de franges se produit.



riences intégrées reproduisant certaines étapes du fonctionnement d'une capsule de FCI. À plus petite échelle, les installations délivrant des énergies de l'ordre du kilojoule (LULI 2000 à l'École polytechnique, Gekko XII à l'université d'Osaka...) permettent de valider des modèles de physique fondamentale utilisés comme données d'entrée dans les codes de simulation de la DAM. Au cours des expériences décrites ici, nous avons étudié des échantillons avec des taux de dopant représentatifs des capsules LMJ et des cibles d'études utilisées dans des expériences à échelle réduite (avec des taux respectivement de 2,5 % et 13 %).

Les ondes de choc générées par des lasers de forte puissance permettent de porter la matière à des pressions de l'ordre du mégabar et des températures de l'ordre de 10 000 K. Dans ces conditions, un isolant comme le plastique se métallise. Le front de choc qui s'y propage est alors réfléchissant. La réflexion d'un faisceau sonde sur le front de choc permet ainsi d'accéder à sa vitesse par mesure du décalage Doppler. L'effet Doppler observé provoque un déplacement des franges au sein d'un interféromètre (**figure 1**).

La mesure de la variation de la vitesse d'un choc transmis d'un matériau de référence (ici du quartz) vers nos échantillons permet de connaître les pressions et densités obtenues par choc. Ces états sont représentés par la courbe d'Hugoniot du matériau considéré. On a pu ainsi mesurer des vitesses de choc comprises entre 10 et 20 km/s, correspondant à des états atteignant jusqu'à 7 Mbar et trois fois la densité normale (**figure 2**).



Figure 2. Courbes d'Hugoniot du plastique dopé au germanium à 2,5 % (bleu) et 13 % (rouge). Les points expérimentaux sont comparés aux modèles QEOS et QEOS-Yukawa [2].



Figure 3. Ionisation moyenne du plastique dopé au germanium à 2,5% (bleu) et 13% (rouge), théorie QEOS (traits pleins), modèle de fermeture du gap semi-conducteur (pointillés) et modèle métallique de Sommerfeld ajusté sur les données expérimentales de réflectivité (points avec barres d'erreur).

Nous avons également mesuré la réflectivité des chocs, qui est ensuite décrite par un modèle de Drude dans lequel nous pouvons tester différents modèles d'ionisation. Le premier modèle que nous avons testé est le modèle de Thomas-Fermi, implémenté au sein du formalisme QEOS [3] largement utilisé pour construire des équations d'état de mélanges. Par ailleurs, nous avons testé un modèle métallique de Sommerfeld et un modèle de fermeture du gap semi-conducteur [4], pour lesquels les paramètres sont ajustés sur les données expérimentales (figure 3). Ces deux modèles semiempiriques sont en bon accord l'un avec l'autre et prédisent des ionisations moyennes jusqu'à dix fois plus faibles que celles prédites par la théorie QEOS [5].

Ces écarts à la théorie QEOS se retrouvent également dans les mesures de température, obtenues par mesure pyrométrique de l'émission propre du front de choc. Il apparaît clairement que la théorie QEOS, si elle capable de correctement prédire la compressibilité d'un mélange comprimé à quelques mégabars, surestime en revanche l'ionisation moyenne. Cela a notamment pour effet de surestimer la conduction thermique électronique du plastique métallisé. Ces résultats ne sont pas entièrement surprenants puisque la théorie de Thomas-Fermi et les modèles d'équations d'état tels que QEOS sont faits pour décrire des états très chauds (>100 000K) pour lesquels des descriptions statistiques sont en général assez pertinentes.

Le domaine exploré ici correspond à des états à la frontière des solides et des plasmas denses, parfois désigné par le terme «*Warm Dense Matter*» dont la description théorique est encore à ce jour en plein développement. L'étude de cette région du diagramme de phase est fondamentale car elle correspond aux états traversés pendant les 10 premières nanosecondes (sur un total de 15) de l'implosion d'une capsule de FCI.

Références

[1] D. CLARKE *et al.*, "Plastic ablator ignition capsule design for the National Ignition Facility", *Phys. Plasmas*, **17**, 052703 (2010).

[2] D. GILLES *et al.*, "Yukawa Monte Carlo and Orbital Free Molecular Dynamics approaches for the equation of state and structural properties of hot dense matter", *High Energy Density Phys.*, **3**, p. 95-98 (2007).

[3] R. M. MORE *et al.*, "A new quotidian equation of state (QEOS) for hot dense matter", *Phys. Fluids*, **31**, 3059 (1988).

[4] D. HICKS et al., "Shock-Induced Transformation of Al2O3 and LiF into Semiconducting Liquids", *Phys. Rev. Lett.*, **91**, 035502 (2003).

[5] G. HUSER et al., "Hugoniot and mean ionization of laser-shocked Ge-doped plastic", *Phys. Plasmas*, **20**, 122703 (2013).

Nouveaux mécanismes d'injection pour les accélérateurs laser-plasma

X. DAVOINE / CEA – DAM Île-de-France

S. CORDE - R. LEHE - C. THAURY / Laboratoire d'optique appliquée (LOA), ENSTA-Paristech – École Polytechnique – CNRS, Palaiseau

Grâce à leur grande compacité et aux caractéristiques uniques des faisceaux d'électrons qu'ils génèrent, les accélérateurs laser-plasma sont envisagés pour de nombreuses applications, comme la production de rayons X pour la radiographie dans des contextes industriel ou biomédical. Cependant, afin de contrôler les propriétés des faisceaux accélérés avec une précision suffisante pour les applications, il est important de bien maîtriser l'injection initiale des électrons dans la structure accélératrice, appelée onde de sillage, qui est créée lors de l'interaction laser-plasma. Deux études récentes réalisées en collaboration avec le LOA ont permis d'une part d'améliorer la compréhension des mécanismes d'injection, et d'autre part de proposer de nouvelles techniques d'injection. Ces résultats ouvrent la voie à la production de faisceaux plus reproductibles et de meilleure qualité.

es accélérateurs d'électrons à sillage laser (figure 1) présentent des champs accélérateurs de trois ordres de grandeur supérieurs à ceux des accélérateurs conventionnels, ce qui permet de les miniaturiser considérablement. Mais, bien que diverses applications soient déjà envisagées, en particulier pour l'imagerie X à très haute résolution, ces accélérateurs laser-plasma souffrent généralement d'une mauvaise stabilité: chaque faisceau diffère du précédent, réduisant ainsi la reproductibilité de l'expérience. De plus, il est souvent difficile d'obtenir à la fois une très bonne qualité de faisceau et une charge conséquente. Afin de dépasser ces limites, des travaux menés en collaboration avec le LOA ont conduit à la découverte de deux nouveaux mécanismes d'injection d'électrons dans un accélérateur à sillage laser: l'auto-injection longitudinale [1] et l'injection optique transverse [2].

Auto-injection longitudinale

Avant de pouvoir être accéléré par l'onde de sillage, le faisceau d'électrons doit d'abord être injecté dans celle-ci. La méthode d'injection la plus



Figure 1. À l'image d'un bateau créant une vague dans son sillage, un faisceau laser ultra-intense et ultra-court (orange) se propageant dans un plasma peu dense peut créer une onde plasma (modulation de la densité électronique) de grande amplitude dans son sillage (bleu). Un champ électrique accélérateur (vert) est associé à cette onde plasma. Un faisceau d'électrons (rouge) se propageant avec cette onde peut être accéléré à de très grandes énergies.



Figure 2. Principe de l'autoinjection longitudinale (a) et transverse (b). Les électrons injectés (trajectoires représentatives en vert) partent de la droite, se font dépasser par le laser (rouge), et sont injectés à l'arrière de la première arche (onde de sillage en bleu).

simple à réaliser expérimentalement est l'autoinjection: avec des paramètres laser et plasma adaptés, une fraction des électrons du plasma peut gagner assez de vitesse lors du passage du laser pour être injectés et former un faisceau. Nous avons démontré [1] que le terme d'auto-injection englobe en réalité deux mécanismes distincts: les auto-injections transverse et longitudinale.

Seule l'auto-injection transverse était connue jusqu'à maintenant. Dans ce cas, les électrons injectés proviennent du bord de l'onde de sillage (figure 2b). Ces électrons contournent le faisceau laser puis sont injectés sur l'axe, à l'arrière de la première arche de l'onde plasma, dans une zone où le champ accélérateur est maximal. Cette injection est très sensible aux petites fluctuations de la forme du faisceau laser, ce qui dégrade la stabilité.

L'auto-injection longitudinale, caractérisée au contraire par l'injection d'électrons provenant de l'axe et traversant le faisceau laser (figure 2a), a pu être mise en évidence à l'aide de simulations 3D et observée expérimentalement pour la première fois au LOA [1]. Une modification de la densité ou longueur du plasma permet de passer d'un type d'injection à l'autre. Au-delà de la découverte de ce nouveau mode d'injection, nous avons montré que celui-ci permettait d'améliorer sensiblement la stabilité de l'accélérateur.

Injection optique transverse

Afin de bien contrôler et stabiliser l'injection, il peut aussi être avantageux de recourir à l'injection optique. Cette technique consiste à utiliser un second faisceau laser qui, en entrant en collision avec le premier, perturbe le mouvement des électrons et provoque l'injection. Jusqu'à maintenant, seule une perturbation du mouvement longitudinal des électrons était recherchée. Nous avons montré à l'aide de simulations qu'il est parfois préférable de créer une perturbation transverse [2]. Cette injection optique transverse permet d'accélérer un grand nombre d'électrons (100 picoCoulomb) tout en garantissant que le faisceau possède une très bonne émittance (0,17 mm.mrad). Que ce soit dans des simulations ou des expériences, de telles émittances, paramètre essentiel des faisceaux de particules, n'avaient été atteintes avec des accélérateurs laser-plasma que pour des faisceaux de petite charge, environ dix fois plus faibles.

Perspectives

Parmi les priorités actuelles de l'accélération laser-plasma figurent le développement d'un accélérateur stable et simple à réaliser, et l'amélioration de la qualité des faisceaux produits. L'auto-injection longitudinale, qui ne nécessite pas de second faisceau laser tout en conduisant à une bonne stabilité, permet de répondre au premier objectif. L'injection optique transverse répond quant à elle au second, grâce aux faisceaux de faible émittance et grande charge qu'elle permet de générer. Ces résultats sont un progrès en vue de l'utilisation de ces accélérateurs pour des applications.

Références

[1] S. CORDE *et al.*, "Observation of longitudinal and transverse selfinjections in laser-plasma accelerators", *Nat. Commun.*, **4**, 1501 (2013).

[2] R. LEHE et al., "Optical transverse injection in laser-plasma acceleration", *Phys. Rev. Lett.*, **111**, 085005 (2013).

Le Γ - Plateau

J. CLÉROUIN - P. ARNAULT - G. ROBERT / CEA – DAM Île-de-France C. TICKNOR - L. COLLINS - J. KRESS / Los Alamos National Laboratory, États-Unis

Le domaine des plasmas chauds et denses couvre les températures de 100000 K à quelques millions de Kelvin et les compressions de une à plusieurs fois la densité du solide. Dans ce domaine, nous montrons l'existence d'un régime dans lequel ionisation et température se compensent pour produire un couplage constant entre particules. Une modélisation simple de ce comportement permet de prédire les propriétés de ces plasmas.

orsque la matière est fortement chauffée (million de Kelvin) et comprimée (dizaines de g/cm³), les atomes perdent tout ou partie de leurs électrons. Ils sont à l'état plasma. Ils sont ionisés et portent une charge Q positive, égale au nombre d'électrons perdus. Les interactions entre les ions, proportionnelles au carré de cette ionisation Q, deviennent fortes. Pour mesurer l'intensité de ces interactions, on définit une constante de couplage $\Gamma = Q^2 e^2 / a kT$ qui est le rapport entre l'énergie de répulsion entre les ions $Q^2 e^2 / a$ et l'énergie cinétique moyenne kT (a est l'ordre de grandeur de la distance entre deux ions).

Par exemple, un plasma de tungstène comprimé à deux fois la densité normale et à 1 MK, sera ionisé 14 fois, ce qui correspond à une constante de couplage Γ de l'ordre de 23. Pour cet état thermodynamique, le tungstène est un plasma fortement corrélé dont les propriétés sont plus proches de celles d'un liquide que d'un gaz. Pour explorer ce domaine de plasmas chauds et denses, nous utilisons la méthode de dynamique moléculaire sans-orbitales (OFMD) décrite précédemment [1] qui se base sur une description semi-classique Thomas-Fermi des électrons. Le raccord avec les calculs de dynamique moléculaire avec orbitales pour des températures inférieures à 100 000 K n'est pas abordé ici, mais a fait l'objet de travaux séparés [2].

Une expérience numérique surprenante

Nous avons effectué une série de simulations isochores sur du tungstène à deux fois la densité normale et pour des températures comprises entre 10 eV et 5 keV (soit 0,11 MK et 55 MK) [3]. Pour chaque température, nous avons directement évalué le paramètre de couplage et nous avons été très surpris de constater que, sur une large gamme de température (de 100 à 2000 eV), ce dernier restait à peu près constant. Sur ce plateau (le Γ -plateau), toute augmentation de la température est donc compensée par une augmentation de l'ionisation Q, proportionnelle à la racine carrée de la température. Expérimentalement, une expérience de diffraction X mettrait en évidence la persistance d'un anneau de diffraction sur toute la gamme de température (**figure 1**).

Lois d'échelle

Le comportement $Q \propto \sqrt{T}$ avait déjà été repéré par Raizer dans les années 1960 et plus récemment par R. More [4]. Bien entendu, à très haute température, lorsque l'on tend vers l'ionisation totale, ou à basse température, cette loi n'est plus valable.



Figure 1. Figure de diffraction synthétique pour un plasma de tungstène à 40 g/cm³ et 400 eV. *Le modèle du* Γ-*plateau prédit une image identique entre 100 et 2000 eV.*



Figure 2. Couplage réduit $\Gamma^* = \Gamma/Z$ en fonction de la température réduite $T^* = T/Z^{4/3}$ (figure universelle) pour différentes densités réduites (de 2.10⁻⁴ à 1.10⁻² mole.cm⁻³). Pour chaque boucle, on fait correspondre un couplage moyen (trait rouge). La zone jaune représente le domaine de paramètres où le Γ -plateau se manifeste.

Pour expliquer ce comportement, il nous faut revenir aux lois d'échelle qui sont à la base du modèle Thomas-Fermi. En désignant la densité réduite par $\rho^* = \rho / AZ$ (où Z et A sont le numéro et la masse atomique) et la température réduite par $T^* = T/Z^{4/3}$, le couplage réduit, Γ^* , est défini par $\Gamma^* = \Gamma/Z$. La formule d'ionisation à température finie de More permet de tracer Γ^* en fonction de T^* pour différentes isochores ρ^* .

Ces courbes, universelles en coordonnés réduites, sont reportées sur la **figure 2**. Elles ne sont pas monotones, mais montrent une oscillation au-dessous d'une certaine densité critique $\rho_c^* = 0,0045$, plus ou moins marquée suivant la densité. Cette oscillation est approximée par une constante (le Γ -plateau) sur une certaine plage de température (trait rouge sur la **figure 2**).

À la densité critique correspond un couplage critique $\Gamma_c^* = 0,335$. C'est la valeur maximale du couplage stabilisé que l'on peut espérer atteindre pour un élément de numéro atomique Z donné. Pour l'aluminium, ce couplage est de 4,3, pour le fer 8,7, pour l'or 26 et pour l'uranium 30. Ainsi, pour créer de manière stabilisée un plasma couplé, il faut se tourner vers des Z élevés.

Conclusion

L'universalité des courbes de couplage de la **figure 2** justifie un ajustement par une relation $\Gamma^* = f(\rho^*)$ qui donne le couplage du plateau en fonction de la seule densité réduite **[5]**. Cette modélisation simple permet de comprendre nos simulations, de prédire pour un corps donné l'existence d'un plateau, et surtout, d'en déduire différentes propriétés (équation d'état, ionisation, coefficients de transport) **[5,6]**. Tout élément peut produire un Γ -plateau, mais les plasmas très couplés ne peuvent être obtenus qu'avec des Z élevés. Des perspectives intéressantes découlent de ce phénomène de stabilisation en chauffage isochore comme les récentes expériences sur les couches enterrées (*buried layers*) chauffées par laser ultra-bref.

Cette étude a été réalisée dans le cadre d'une collaboration DAM-NNSA (P184).

Références

[1] F. LAMBERT, J. CLEROUIN, S. MAZEVET, "Structural and dynamical properties of hot dense matter by Thomas-Fermi molecular dynamics", *Europhys. Lett.*, **75**, p. 681 (2007).

[2] J. F. DANEL, L. KAZANDJIAN, G. ZERAH, "Equation of state of dense plasmas by ab initio simulations: Bridging the gap between quantum molecular dynamics and orbital-free molecular dynamics at high temperature", *Phys. Plasmas*, **19**, 122712 (2012).

[3] J. CLÉROUIN, P. ARNAULT, G. ROBERT, L. COLLINS, J. KRESS, "Behavior of the coupling parameter under isochoric heating in a high-Z plasma", *Phys. Rev. E*, **87**: 061101, (2013).

[4] R. M. MORE, "Atoms in dense plasmas", *rapport UCRL 93926* (1986), disponible sur: <u>www.osti.gov/scitech/servlets/purl/6278776</u>.

[5] P. ARNAULT, J. CLÉROUIN, G. ROBERT, C. TICKNOR, L. COLLINS, J. KRESS, "Thomas-Fermi Z-scaling laws and coupling stabilization for plasmas", *Phys. Rev. E*, **88**: 063106 (2013).

[6] P. ARNAULT, "Modeling viscosity and diffusion of plasma for pure elements and multicomponent mixtures from weakly to strongly coupled regimes", *High Energy Density Phys.*, **9**, p. 711-721 (2013).

La température du noyau de la Terre réévaluée

A. DEWAELE - S. ANZELLINI - P. LOUBEYRE / CEA – DAM Île-de-France M. MEZOUAR / ESRF, Grenoble

G. MORARD / CNRS – Université Pierre et Marie Curie, Paris

Nous avons mesuré au laboratoire les conditions de température régnant près du centre de la Terre. Son noyau est constitué essentiellement de fer, liquide ou solide en son centre. Nous avons donc soumis un micro-grain de fer aux conditions extrêmes qu'on trouve dans le noyau terrestre, la zone la plus profonde de notre planète, et déterminé sont état en utilisant le faisceau X de l'ESRF (*European Synchrotron Radiation Facility*), le plus brillant du monde. La mesure de son point de fusion a permis de déterminer la température dans le noyau : entre 4000 K et 5900 K, suivant la profondeur.

a Terre est comparable à une gigantesque machine thermique, dont la chaleur provient en partie de son noyau, situé au-delà de 2900 km de profondeur et constitué essentiellement de fer; il y règne une pression allant de 1,3 million d'atmosphères (ou 130 Gigapascals, GPa) à 3,6 millions d'atmosphères. La chaleur provenant du noyau est essentielle car elle influence la nature des mouvements convectifs dans le manteau, responsables de la tectonique des plaques [1]. C'est aussi cette chaleur qui permet d'entretenir le champ magnétique terrestre. Pour quantifier cette chaleur, il est nécessaire de connaître la température dans le noyau; mais cette température ne peut se mesurer directement.

Le noyau est en grande partie liquide mais, en observant les ondes sismiques qui traversent la Terre, les sismologues savent que sa partie la plus profonde, qu'on appelle la graine, est solide. La graine grossit très lentement par solidification du noyau liquide. À la limite noyau-graine, à 5 150 km de profondeur et 330 GPa, la température doit donc être proche de la température de fusion du fer. Pour connaître la température dans le noyau terrestre, il suffit donc de connaître la température de fusion du fer à 330 GPa... Cette question avait déjà motivé plusieurs équipes,







Figure 2. Diagramme de phase du fer à haute pression et haute température. Les symboles indiquent les conditions auxquelles une mesure par diffraction de rayons X a été effectuée. Les lignes de changement de phase sont basées sur ces mesures.

mais, jusqu'à présent, les évaluations expérimentales et théoriques divergeaient.

Nous avons essayé de comprendre cette divergence. De minuscules grains de fer, de la taille de grains de poussière (quelques microns), ont été comprimés entre deux pointes de diamants dans un dispositif appelé cellule à enclumes de diamants, créant ainsi une pression atteignant 220 GPa [2]. Deux faisceaux laser ont permis de chauffer les échantillons à plusieurs milliers de degrés (figure 1). Grâce au faisceau ultra fin de rayons X de l'ESRF, nous avons pu déterminer par diffraction l'état de l'échantillon, solide ou liquide (figure 2). Cette technique n'avait pas encore été employée car elle est très difficile à mettre en œuvre pour des échantillons si petits. Les mesures ont confirmé les résultats théoriques [3]. Nous pensons aussi avoir élucidé les divergences entre les précédentes évaluations expérimentales de la température de fusion du fer dans ces conditions [4] et les calculs théoriques. En effet, nous avons mis en évidence par diffraction un phénomène de recristallisation du fer solide en dessous de son point de fusion. Ce phénomène aurait créé des mouvements de surface qui ont été interprétés comme un signe de passage à la fusion.

Extrapolées jusque 330 GPa, les mesures donnent une température de fusion du fer de 6230 K environ. En prenant en compte une diminution de ce point de fusion, estimée à 700 K [3], due à la présence d'éléments légers (Si, S, O...) dans le noyau, nous avons estimé la température dans le noyau: entre 4000 K et 5900 K suivant la profondeur.

Le flux de chaleur qui s'en échappe serait alors d'environ 10 Térawatt, une valeur qui confirme les modèles géophysiques du champ magnétique terrestre. Il pourrait suffire à faire fondre le manteau à sa base, ce qui favoriserait des mouvements de montée d'un fin panache de matériau mantellique vers la surface de la Terre. Ces panaches sont responsables de la formation de volcans qu'on appelle « points chauds » comme ceux qui constituent les îles d'Hawaii ou de la Réunion.

Références

[1] T. LAY, J. HERNLUND, B. A. BUFFETT, "Core-mantle boundary heat flow", *Nat. Geosci.*, 1, p. 25-32 (2008).

[2] S. ANZELLINI, A. DEWAELE, M. MEZOUAR, P. LOUBEYRE, G. MORARD, "Melting of iron at Eath's inner core boundary based on fast X-ray diffraction", *Science*, **340**, p. 464-466 (2013).

[3] D. ALFÈ, M. J. GILLAN, G. D. PRICE, "Temperature and composition of the Earth's core", *Contemp. Phys.*, **48**, p. 63-80 (2007).

[4] R. BOEHLER, "Temperatures in the Earth's core from meltingpoint measurements of iron at high static pressures", *Nature*, **363**, p. 534-536 (1993).

PHYSIQUE NUCLÉAIRE

Un nouveau mode de fission éclaire l'origine cosmique des terres rares

S. HILAIRE - N. DUBRAY - J.-F. LEMAITRE / CEA - DAM Île-de-France

J.-L. SIDA - S. PANEBIANCO / CEA – DSM, Saclay

S. GORIELY / Institut d'astronomie et d'astrophysique, Belgique

A. BAUSWEIN / Aristotle University of Thessaloniki, Grèce

H.-T. JANKA / Max-Planck Institut fur Astrophysik, Garching, Allemagne

Une collaboration européenne combinant des prédictions issues de calculs de structure nucléaire avec des modèles de nucléosynthèse apporte, pour la première fois, une explication simple à l'abondance des terres rares dans le système solaire : une fission doublement asymétrique.

e processus de capture de neutrons rapides (processus r) est un des processus de nucléosynthèse stellaire responsables de la production des noyaux au-delà du fer. De nombreuses zones d'ombres demeurent encore sur les conditions et les sites astrophysiques dans lesquels il est susceptible de se dérouler. Deux possibilités occupent à ce jour le devant de la scène : l'explosion de supernovæ et la coalescence d'étoiles à neutrons.

Dans le premier cas, la difficulté réside dans l'obtention, à l'issue de l'explosion stellaire, des conditions thermodynamiques et neutroniques suffisantes pour que ce processus s'engage de manière convaincante. À ce jour, les modèles les plus modernes ne parviennent toujours pas à les obtenir. Dans le second cas, par contre, l'intensité du flux neutronique est telle que la viabilité du site vis-à-vis du processus r dépend davantage de la physique nucléaire à l'oeuvre durant ce processus que des conditions astrophysiques en tant que telles. Plus précisément, le phénomène de fission vient recycler les transactinides (noyaux avec plus de 103 protons) en fragments de fissions, ce qui rend la composition finale de la matière éjectée très peu sensible aux abondances initiales et aux conditions astrophysiques du milieu collisionnel [1].

Cette matière est essentiellement constituée de noyaux de masse A supérieure à 140 et produit en particulier une abondance autour du pic A =195 en bon accord avec les abondances observées dans le système solaire. Pour les noyaux plus légers, typiquement dans la zone de masse des terres rares (140 \leq A \leq 175), la situation est en revanche moins claire, et dépend en particulier très fortement des propriétés de la fission en général et de la distribution des fragments de fission en particulier.

La simulation

Depuis plusieurs années, les moyens de calcul intensif dont nous disposons nous ont permis de réaliser des calculs systématiques pour l'ensemble des noyaux susceptibles d'exister dans l'univers. Nous avons en particulier déterminé les énergies de tous les noyaux en fonction de leur déformation axiale [2]. Ces informations constituent la base à partir de laquelle nous avons modernisé le modèle du point de scission [3] afin de pouvoir l'appliquer avec plus de confiance dans des régions où n'existent pas de données expérimentales relatives aux distributions

Figure 1. Abondance en fonction de la masse atomique. Les carrés **rouges** (resp. bleus) correspondent aux prédictions issues de notre simulation en utilisant les distributions de fragments prédites par le code SPY (resp. GEF). Les abondances solaires sont représentées par les cercles.





Figure 2. Distribution de fragments prédites par le modèle SPY pour des isobares de masse 278.

de fragments. Ce modèle, appelé SPY, développé dans le cadre de la collaboration COPHYNU entre la DAM et la DSM, a d'ores et déjà prouvé son potentiel prédictif [**3**].

Nous l'avons donc utilisé pour prédire, de manière exhaustive, les distributions de fragments obtenues à partir de tous les noyaux fissionnant dans un calcul de processus r. Ces prédictions ont alimenté une base de données de réactions nucléaires pour plus de 5000 noyaux, construite à partir du code TALYS [4]. Cette dernière permet de traiter l'évolution de la population nucléaire durant la coalescence de l'étoile à neutron avec son compagnon, en prenant en compte, de manière cohérente, toutes les réactions nucléaires d'intérêt.

Notons l'utilisation systématique de données microscopiques pour son élaboration en raison de l'absence d'informations expérimentales pour la quasi-totalité des noyaux concernés par cette étude.

Les résultats

Les abondances obtenues à l'issue de la simulation sont représentées sur la **figure 1** et comparées aux abondances solaires. Sur cette figure sont aussi représentées les abondances obtenues en remplaçant les distributions de fragments fournies par SPY par celles issues du modèle GEF ajusté dans les zones accessibles à l'expérience, toutes choses étant égales par ailleurs. Comme on peut le constater, l'accord avec les abondances solaires dans la zone des terres rares est bien plus satisfaisant lorsque l'on repose sur les prédictions de SPY. Cette observation reste valable si l'on modifie certains éléments de la simulation tels que les taux de réactions nucléaires ou les modèles de décroissance β [5], preuve que la source principale d'accord est la distribution de fragments de fission spécifique du modèle SPY.

En y regardant de plus près, nous avons constaté que ces distributions fournies par SPY ont un caractère totalement singulier dans la région des progéniteurs des terres rares, jamais observé jusqu'alors. Il consiste en une distribution doublement asymétrique (**figure 2**) qui semble confirmée par des calculs plus microscopiques (**figure 3**).

Conclusion

Ce travail éclaire sous un jour nouveau le problème de l'abondance des terres rares dans le système solaire.

Ces éléments pourraient avoir été créés lors de collisions d'étoiles à neutrons permettant à un processus r de se produire. Cette conclusion se base sur nos prédictions relatives à un nouveau mode de fission, doublement asymétrique, se développant pour des noyaux de masse $A \approx 280$.



Figure 3. Surface d'énergie potentielle du ²⁷⁸Cf en fonction des déformations quadripolaires Q_{20} et octupolaires Q_{30} . Les deux vallées asymétriques sont indiquées par les flèches rouges.

Références

[1] O. KOROBKIN *et al.*, "On the astrophysical robustness of neutron star merger r-process", *Month. Not. Roy. Astro. Soc.*, **426**, p. 1940-1949 (2012).

[2] S. HILAIRE, M. GIROD, "Large-scale mean-field calculations from proton to neutron drip lines using the D1S Gogny force", *Eur. Phys. J.*, A33, p. 237-241 (2007).

[3] S. PANEBIANCO *et al.*, ""Role of deformed shell effects on the mass asymmetry in nuclear fission of mercury isotopes", *Phys. Rev. C.*, **86**, 064601 (2012).

[4] S. GORIELY, S. HILAIRE, A.J. KONING, "Improved predictions of nuclear reaction rates with the TALYS reaction code for astrophysical applications", *Astron. Astrophys.*, **487**, p. 767-774 (2008).

[5] S. GORIELY *et al.*, "New fission fragment distributions and r -process origin of the rare-earth elements", *Phys. Rev. Lett.*, **111**, 242502 (2013).

La météorite de Chelyabinsk: l'évènement le plus puissant jamais enregistré par le réseau international de surveillance

A. LE PICHON - N. BRACHET - P. HERRY - J. ASSINK / CEA – DAM Île-de-France

Le 15 Février 2013, une météorite a illuminé le ciel au-dessus des montagnes de l'Oural. Les ondes acoustiques générées lors de sa désintégration ont pu être détectées après une propagation de deux révolutions complètes autour du globe. L'énergie explosive estimée à environ 500 kt d'équivalent TNT fait de cet évènement naturel le plus énergétique jamais enregistré par le réseau du Système international de surveillance (SSI) de l'Organisation du traité d'interdiction complète des essais nucléaires (OTICE). L'analyse des enregistrements montre l'incertitude des modèles classiques estimant les dégâts occasionnés par l'onde de choc d'une explosion en altitude. Dans le cadre de la vérification du TICE, la météorite de Chelyabinsk constitue un événement de référence permettant de calibrer à l'échelle du globe les performances du SSI pour détecter, localiser et discriminer des évènements d'intérêt.

Analyse des enregistrements

Le 15 février 2013 à 03h20 TU, une météorite s'est désintégrée à 1 500 km à l'est de Moscou. L'onde de choc de l'explosion a fait près de 1 500 blessés et occasionné de nombreux dégâts sur une vaste région localisée autour de la ville de Chelyabinsk (55,2N; 61,4E). Les dégâts matériels (bris de vitres, effondrement de bâtiments) ont été constatés dans un rayon de plusieurs dizaines de kilomètres. Lors de sa pénétration supersonique dans l'atmosphère, la météorite, fortement décélérée, s'est désintégrée à une altitude d'environ 25 km. Des vidéos amateurs attestent d'une traînée de vapeur longue d'environ 500 km dans le ciel. L'onde de choc de l'explosion principale a été accompagnée d'une dizaine d'explosions liées à la désintégration de fragments. Bien que la plupart des fragments se soient consumés dans l'atmosphère, des impacts de plusieurs mètres de diamètre ont été découverts sur le lac glacé de



Figure 1. (a): chemin de propagation des ondes détectées par la station IS53 en Alaska (triangle vert). La phase Ig1 (en rouge) désigne le trajet direct. La phase Ig5 (en jaune) correspond au trajet comprenant deux révolutions complètes autour du globe. (b): détection de la phase Ig5 sur la station IS53 après traitement des ondes entre 0,01 et 4 Hz. L'analyse temps-fréquence de la direction d'arrivée des ondes montre le signal d'intérêt (en rose) noyé dans le bruit de la houle océanique de l'océan Pacifique (en bleu). Le signal dure plus de deux heures et sa période est d'environ une minute. Chelyabinsk. D'après la NASA, l'objet provenant de la ceinture d'astéroïdes, mesurait 17 mètres et pesait environ 10000 tonnes.

Cet événement est le plus puissant jamais enregistré par le réseau du SSI de l'OTICE **[1]**. Les ondes acoustiques générées par l'explosion ont été détectées à l'échelle du globe par 20 stations infrasons du SSI, certaines d'entre elles ayant enregistré plusieurs passages, dont des arrivées antipodales. De telles arrivées n'ont pas été observées depuis la dernière éruption majeure du Mont Saint Helens (État de Washington, USA) en 1980. La **figure 1** montre un exemple d'enregistrement après deux révolutions complètes autour du globe, plus de trois jours après la désintégration.

L'énergie totale libérée a été estimée avec les relations empiriques établies à partir des campagnes de mesures d'explosions nucléaires. Elle correspond à la charge d'une explosion en équivalent TNT qui produirait les mêmes effets que l'onde de choc induite par la pénétration de la météorite dans l'atmosphère. Ces relations utilisent les mesures d'amplitude ou de période des signaux infrasons. L'application de ces formules conduit à une énergie moyenne de 500 kilotonnes, équivalente à environ trente fois la bombe d'Hiroshima [2]. De tels évènements, exceptionnels par les grandes distances de propagation, sont observés en moyenne tous les siècles. À titre de comparaison, la période de retour de météorites de 10 mégatonnes, comme celle de Tunguska en Russie (1908), est d'un millénaire (figure 2). L'analyse détaillée des observations issues de différentes techniques complémentaires a aussi montré l'incertitude des modèles estimant les dégâts occasionnés par l'onde de choc de l'explosion [3]. Ces modèles, établis pour des explosions à faible altitude, sont les seuls dont nous disposions en raison du manque de contraintes observationnelles. Ils surestiment sans doute ici les effets de la désintégration en raison des effets complexes de la propagation dans un milieu inhomogène et de sa faible densité.

Conclusion

La densification des réseaux infrasons (SSI et réseaux régionaux) permet d'enrichir les bases d'observations de rentrée d'objets célestes dans l'atmosphère, d'affiner les probabilités d'occurrence selon leur taille et énergie, ainsi que les niveaux de dégâts liés à leur impact. Ces mesures sont très utiles quand les évènements se produisent de jour ou dans des régions peu instrumentées, comme au-dessus des océans, en absence d'autres techniques d'observation plus classiques (radars, télescopes, caméras, satellites). L'analyse détaillée de tels évènements d'origine naturelle, enregistrés à l'échelle du globe, permet d'extraire la signature acoustique d'une source explosive en altitude, d'améliorer les méthodes de détection et de discrimination d'évènements d'intérêt dans le cadre de la surveillance du TICE.

Figure 2. Estimation du nombre cumulé d'impacts sur Terre par an, basée sur 20 ans d'observations satellitaires et infrasons (graphe adapté de **Brown** *et al.* [3]).



Références

[1] <u>http://www.ctbto.org</u>.

[2] A. LE PICHON, L. CERANNA, C. PILGER, P. MIALLE, D. BROWN, P. HERRY, N. BRACHET, "2013 Russian Fireball largest ever detected by CTBTO infrasound sensors", *Geophys. Res. Lett.*, **40**(14), p. 3732–3737 (2013) – DOI: 10.1002/grl.50619.

[3] P. G. BROWN *et al.*, "A 500-kiloton airburst over Chelyabinsk and an enhanced hazard from small impactors", *Nature*, **503**, p. 238–241 (2013) – <u>doi:10.1038/nature12741</u>.

[4] A. HARRIS, "The value of enhanced NEO surveys", IAA-PDC13–05–09, 2013, *Planetary Defence Conference*, IAA (2013).

Spéciation de l'uranium dans des particules micrométriques

F. POINTURIER - O. MARIE / CEA – DAM Île-de-France

La connaissance de la forme chimique – ou spéciation – de l'uranium prélevé sous forme de particules micrométriques à l'intérieur ou au voisinage immédiat d'installations nucléaires est très utile pour identifier les procédés mis en œuvre et identifier d'éventuelles activités non déclarées. Un spectromètre micro-Raman couplé à un microscope électronique à balayage a été utilisé pour la première fois pour analyser des poussières composées de différents oxydes d'uranium. Grâce à ce couplage, tous les composés étudiés ont pu être identifiés dans des particules très petites, jusqu'à 1 µm.

ur le plan analytique, le programme des garanties contre la prolifération nucléaire de l'AIEA est basé sur l'analyse des poussières micrométriques prélevées dans les installations nucléaires, car certaines de ces particules proviennent des composés uranifères utilisés sur les sites. Les caractérisations isotopique, élémentaire et moléculaire de ces objets microscopiques, réalisées par un petit nombre de laboratoires spécialisés, permettent d'identifier le type de matériau et son usage potentiel. La spéciation de l'uranium (ou détermination de la forme physico-chimique du composé), pratiquée au niveau de la particule individuelle, peut apporter un complément d'information décisif, notamment pour identifier le procédé mis en œuvre. La spectrométrie micro-Raman (SMR), qui résulte du couplage d'un spectromètre Raman avec un microscope optique, permet de déterminer les structures moléculaires et cristallines d'un composé

avec une résolution spatiale micrométrique. De plus, plusieurs études ont prouvé que la spectrométrie Raman permet d'identifier de manière univoque les principaux composés de l'uranium à partir de quantités macroscopiques. Les travaux effectués au laboratoire montrent que ceci est également réalisable au niveau de la particule micrométrique, grâce à un dispositif de couplage novateur qui permet d'effectuer l'analyse Raman à l'intérieur du microscope électronique à balayage (MEB) utilisé pour repérer les particules d'uranium.

Matériels et méthodes

Le MEB utilisé (XL-30, FEI, Pays-Bas) est équipé d'un logiciel automatique de recherche des particules dont le numéro atomique moyen (Z) dépasse un seuil fixé par l'utilisateur. Initialement développé pour les laboratoires de police scientifique (recherche







Figure 2. Image en électrons rétrodiffusés (a) et spectre Raman (b) de la plus petite particule d'oxyde d'uranium jamais caractérisée par spectrométrie Raman.

des résidus de tirs d'armes à feu), ce logiciel convient parfaitement aux composés de l'uranium dont les Z moyens sont élevés. Le SMR mis en œuvre pour cette étude (InVia, Renishaw Ltd, Royaume-Uni) est parfaitement adapté à l'analyse de microéchantillons. Le couplage MEB-SMR a été conçu pour obtenir au cours de la même analyse des informations topographiques, élémentaires et chimiques avec les deux instruments. Son installation, la première en France, a nécessité l'intervention des deux fabricants, plusieurs modifications instrumentales et une longue phase d'essais.

Résultats et discussion

Le couple MEB-SMR a été utilisé pour caractériser des microparticules de quatre types d'oxydes d'uranium couramment utilisés dans l'industrie nucléaire $[UO_2, U_3O_8, UO_3 \text{ et } UO_4 \cdot 4(H_2O)]$. Les particules d'uranium, déposées au préalable sur des disques de carbone, sont détectées et localisées par microscopie électronique puis l'analyse Raman est effectuée directement à l'intérieur du MEB. Bien que le taux d'échec soit conséquent et le rapport signal sur bruit cing fois inférieur à celui du SMR utilisé seul, et en dépit des difficultés inhérentes à la gestion simultanée de deux instruments et à la taille extrêmement réduite des échantillons, tous les composés étudiés ont pu être identifiés à partir de particules dont la taille n'excède pas quelques µm. Les spectres typiques obtenus par couplage MEB-SMR pour chacune des formes chimiques sont présentés sur la figure 1. Les bandes Raman sont similaires à celles obtenues avec le SMR seul à partir de plus grandes particules. Le plus petit objet d'oxyde d'uranium que nous avons pu caractériser jusqu'à présent est une particule d'UO₃ de 0,8 μm x 1,4 μm (**figure 2**).

Nous avons démontré que les principaux oxydes d'uranium utilisés dans l'industrie nucléaire

peuvent être identifiés sous forme de particules dont la taille est de l'ordre du micromètre [1], alors qu'après transfert du MEB au SMR et relocalisation, seules des poussières de plus de 5 μ m sont retrouvées et analysées avec succès [2]. Une autre étude, menée en collaboration avec les centres de recherche communs européens, a permis d'étudier les phénomènes d'oxydation de microparticules d'oxyfluorure d'uranium (UO₂F₂) à l'aide du couplage MEB-SMR [3]. La prochaine étape est d'appliquer cette technique à l'expertise d'échantillons provenant d'installations nucléaires dans lesquels les particules d'uranium sont environnées d'une multitude de poussières d'origines diverses qui peuvent perturber l'analyse Raman.

Références

[1] F. POINTURIER, O. MARIE, "Use of micro-Raman spectrometry coupled with scanning electron microscopy to determine the chemical form of uranium compounds in micrometer-size particles", *J. Raman Spectrosc.*, **44**, p. 1753-1759 (2013).

[2] F. POINTURIER, O. MARIE, "Identification of the chemical forms of uranium compounds in micrometer-size particles by means of micro-Raman spectrometry and scanning electron microscope", *Spectrochim. Acta B*, **65**, p. 797-804 (2010).

[3] E. A. STEFANIAK, F. POINTURIER, O. MARIE, J. TRUYENS, Y. AREGBE, "In-SEM Raman microspectroscopy coupled with EDX – a case study of uranium reference particles", *Analyst*, **139**, p. 668-675 (2014).

Détection électrochimique du nitrométhane pour un détecteur de traces d'explosifs

S. DELILE - P. PALMAS - T. MAILLOU / CEA – Le Ripault V. LAIR - M. CASSIR / Chimie ParisTech, Paris

Nébulex est un appareil permettant de solubiliser les vapeurs d'analyte présentes dans l'atmosphère *via* la formation d'un spray. L'objet de ce travail est de développer un nouveau système de détection *in situ* par électrochimie pour le nitrométhane, un constituant de compositions explosives artisanales. Les paramètres de mesure ont d'abord été optimisés pour évaluer la limite de détection qui peut être atteinte avec un système simple et robuste. Le mécanisme de réaction a ensuite été revisité dans nos conditions spécifiques et comparé à celui décrit dans la littérature. Enfin, le système de détection a été miniaturisé et intégré au prototype Nébulex et des essais de détection de vapeurs de nitrométhane ont été menés.

e développement de détecteurs de traces d'explosifs est un enjeu majeur pour la lutte contre le terrorisme.

Parmi les différents dispositifs développés au CEA – Le Ripault, Nébulex (**figure 1**) est un appareil permettant de solubiliser des vapeurs et de les détecter en solution **[1]**. Les récents développements visent à élargir le nombre et la nature des cibles détectables avec cet appareil. Nous nous sommes intéressés en premier lieu à la détection du nitrométhane (NM) **[2]** par mesure électrochimique.

Figure 1. Prototype Nébulex.



Ce composé est utilisé comme solvant dans l'industrie chimique et comme carburant dans les sports mécaniques, mais son usage peut être détourné pour la fabrication d'une bombe artisanale.

Électroréduction du nitrométhane

Le groupement nitro du nitrométhane peut être réduit chimiquement en polarisant négativement une électrode plongée dans une solution. Le courant électrique généré lors de cette réaction peut ainsi être utilisé comme signal de détection. Cette approche électrochimique présente plusieurs avantages pour la détection avec une bonne sensibilité et des temps de réponse courts, et les techniques mises en oeuvre sont simples et peu coûteuses. Elle demande néanmoins une phase d'optimisation des conditions expérimentales : la nature des électrodes, la solution électrolytique. ainsi que la méthode de mesure. Dans notre cas, une limite de détection de l'ordre de 10⁻⁶ mol/L a été obtenue avec une électrode de travail en or, une solution électrolytique aqueuse tamponnée à pH 7,5 et la technique de voltampérométrie différentielle à onde carrée (SWV).

Mécanisme réactionnel

Le mécanisme d'électroréduction du NM, décrit dans la littérature [3], implique la formation de la N-méthylhydroxylamine via l'échange de 4 électrons par molécule électrolysée. Les conditions particulières imposées par le prototype Nebulex nous ont conduits à reconsidérer ce résultat. L'analyse par spectrométrie de résonance magnétique nucléaire (RMN) de solutions



de NM électrolysées a révélé la présence d'autres produits. Leur structure a pu être identifiée en combinant les techniques de RMN du proton ¹H, du carbone ¹³C, de corrélation à deux dimensions ¹H-¹³C, de l'azote ¹⁴N et le schéma mécanistique a pu être établi (**figure 2**).

La N-méthylhydroxylamine CH₃NHOH produite lors de la réduction du NM (CH₃NO₂) est ensuite réoxydée à la contre-électrode en nitrosométhane CH₂NO. Dû à sa très faible stabilité, ce produit se dégrade rapidement en azoxyméthane CH₃N(O)=NCH₃, en formaldoxime CH₂NOH et en acide formique HCOOH. L'échange de 4 électrons lors de la réaction à l'électrode de travail a pu être confirmé en comparant l'intégration du courant sur les courbes d'électrolyse et le rapport de concentration CH₃NHOH/CH₃NO₂ mesuré par RMN.

Intégration dans le prototype Nébulex

L'intégration dans le prototype Nébulex a été réalisée avec un potentiostat compact et des miniélectrodes sérigraphiées. La mesure a été déportée depuis la cuve de l'appareil vers une cellule en flux, alimentée en solution nébulisée par une boucle fermée. Ce montage a permis d'obtenir une limite de détection du même ordre de grandeur (10⁻⁶ mol/L).

Après avoir quantifié la teneur des vapeurs de NM pouvant être générée dans différentes conditions expérimentales, des essais de détection ont pu être menés avec le prototype Nébulex (**figure 3**). Le pic de réduction du NM apparaît moins d'une minute après le début d'exposition aux vapeurs même pour des teneurs en NM inférieures à 10 ppmv. Le prototype a également été évalué en condition quasi réelle d'utilisation en disposant quelques millilitres de NM dans un local vide de 32 m³. Une fois encore le NM a été détecté avec un temps de détection légèrement supérieur à une minute dû aux conditions expérimentales moins favorables.

Conclusion

Un nouveau protocole de détection électrochimique a été développé pour la détection de vapeurs de nitrométhane. Les conditions de mesure ont été optimisées par l'utilisation d'une électrode d'or en milieu aqueux à pH 7,5 et par une technique voltampérométrique différentielle. Une étude RMN quantitative des produits formés dans ces conditions expérimentales a permis de préciser le mécanisme de réaction du nitrométhane par rapport à celui décrit dans la littérature.

Finalement, le dispositif expérimental a été miniaturisé et intégré au prototype Nébulex. Les essais de détection ont donné des performances très encourageantes avec des temps de détection de l'ordre d'une minute en condition d'utilisation quasi réelles.



Figure 3. Détection de vapeurs de NM à une teneur de 100 ppmv.

Références

[1] P. CHARRUE, G. THEVENOT, G. CAVALIN, R. DELMAS, «Appareil et procédé pour extraire des éléments gazeux liquides et/ou solides d'un milieu gazeux et les concentrer dans un milieu liquide», *brevet* WO/2005/025721 (2005).

[2] S. DELILE, T. MAILLOU, P. PALMAS, V. LAIR, M. CASSIR, "Optimization of the electrochemical reduction of nitromethane for the development of an integrated portable sensor", *Electrochim. Acta*, **99**, p. 94-101 (2013).

[3] F. PRIETO, I. NAVARRO, M. RUEDA, "Impedance analysis of the mechanism for nitromethane reduction in aqueous solutions: the influence of pH", *J. Phys. Chem.*, **100**, p. 16346-16355 (1996).

Mesures de vitesse de détonation au sein de matériaux énergétiques

A. LEFRANÇOIS - J. LUC - P. DELCOR - M. GENETIER - Y. BARBARIN / CEA – Gramat S. MAGNE - G. LAFFONT - P. FERDINAND / CEA – Saclay

Cet article présente trois méthodes expérimentales de mesure de vitesse de détonation au sein de matériaux énergétiques ainsi qu'une première comparaison expérience-calcul de l'utilisation de fibres optiques à réseau de Bragg. L'objectif est de valider des modèles de transition choc-détonation des explosifs secondaires, étape indispensable pour l'amélioration des processus de conception et de qualification de ces matériaux, et également pour l'évaluation de leur vulnérabilité. Les techniques expérimentales présentées, qui mesurent l'évolution en continu de la vitesse de choc ou de détonation, sont très novatrices car elles permettent d'étudier de manière distribuée et faiblement intrusive les phases transitoires d'initiation ou d'extinction.

es ondes de choc, qui se propagent généralement à des vitesses comprises entre 2 et 10 km/s (ou mm/µs), dépassent, par définition, la vitesse du son dans le matériau étudié. Dans le cas d'un explosif, on parle alors de détonation.

Trois techniques optiques de mesure de vitesse sont utilisées; elles concernent la fibre optique percée, la fibre nue et la fibre à réseau de Bragg (FBG). La première méthode fait appel à des fibres multimodes de PMMA (polyméthacrylate de méthyle) et à l'ionisation d'une série de trous séparés par un pas submillimétrique [1]. La deuxième méthode utilise des fibres monomodes et une technique d'interférométrie laser [2,3]. La troisième méthode est basée sur l'utilisation d'une fibre optique FBG **[4,5]**. Un réseau de Bragg est un réflecteur spectralement sélectif grâce à une alternance submicronique de l'indice de réfraction réalisé par interférences laser ultraviolettes au sein du coeur de fibres optiques monomodes. Pour cette étude, un réseau de Bragg avec un pas de modulation d'indice continûment variable (chirped grating) est inséré au sein du montage explosif. Ce type de réseau peut être vu comme une mise en série des modulations élémentaires de l'indice de réfraction, dont la période évolue linéairement avec l'abscisse. En pratique, la longueur d'onde réfléchie évolue linéairement avec la position, ce qui permet un étalement du spectre réfléchi



24 INSTRUMENTATION & MÉTROLOGIE

Explosif	Vitesse de détonation (km/s)		
	Expérimentation	Simulation numérique	
V401	8,8 (± 5,8%)	8,6 (± 0,3%)	
PBXN109	7,3 (± 0,8%)	7,5 (± 0,4%)	
B2238	8,1 (± 1,4%)	7,9 (± 0,2%)	

Tableau 1. Comparaison expériences FBG - calculs.

sur plusieurs dizaines de nanomètres. Il est habituellement utilisé en télécommunications optiques comme filtre large bande pour discriminer des raies spectrales, ou pour assurer une compensation de dispersion chromatique dans les boîtiers de réception. Dans notre cas, le principe consiste à mesurer en temps réel l'évolution « quasi linéaire » de la puissance lumineuse réfléchie par le réseau de Bragg "chirpé" au fur et à mesure de sa destruction par l'onde de choc afin d'analyser sa propagation au sein du montage explosif au cours du temps.

Les réseaux de Bragg utilisés possèdent un taux de réflexion proche de 99% et une longueur adaptable inférieure à 10 cm. La **figure 1** présente le montage optique. La lumière provenant d'une source laser fibrée est injectée sur le port n°1 d'un circulateur optique à trois ports. La lumière sortant du port n°2 est envoyée au réseau de Bragg testé. La lumière réfléchie par ce réseau remonte au port n°2 et sort par le port n°3, puis est mesurée par un photodétecteur préamplifié. La tension de sortie est enregistrée sur un oscilloscope numérique rapide.

La quantité de lumière réfléchie par le réseau de Bragg est une fonction linéaire de l'intégrale du spectre de Bragg. La fonction de transfert de ce réseau doit être calibrée avant les expériences de détonique. Il s'agit de relier le flux lumineux mesuré par la photodiode avec la longueur résiduelle du réseau. Ce calibrage de l'ensemble de la chaîne métrologique est essentiel et nécessite l'usage d'une fibre dédiée. Des fibres d'un même lot de fabrication sont utilisées alors pour chaque expérimentation.

Les potentialités de cette dernière méthode ont pu être évaluées lors d'une expérimentation réalisée au CEA – Gramat [1]. Lors de cette expérimentation, trois explosifs (V401, PBXN109 et B2238) initiés par un booster ont été assemblés (diamètre 30 mm; longueur totale 60 mm – 3 x 20 mm) dans le but d'observer les différentes vitesses de détonation et de les comparer aux valeurs obtenues par simulations numériques 2D axisymétriques réalisées avec le code hydrodynamique Ouranos. Les valeurs d'incertitude sont calculées à partir des régressions linéaires dans les deux cas. Un bon accord expérience-calcul est obtenu (**tableau 1**), permettant d'envisager d'appliquer cette méthode à l'étude des phases transitoires.

Références

[1] S. MAGNE *et al.*, "Real-time distributed measurement of detonation velocities inside high explosives with the help of chirped fiber Bragg gratings", *Proc. SPIE*, 19-22 May 2013, Kraków, Poland, **8794**, 87942K (2013).

[2] D. R. GOOSMAN *et al.*, "Optical probes for continuous Fabry-Perot velocimetry inside materials", *Proc. SPIE*, 20-24 september 2004, Alexandria, VA, United States, **5580**, 517 (2005).

[3] P. A. FRUGIER *et al.*, "PDV and shock physics: application to nitromethane shock-detonation transition and particles ejection", *Proc. SPIE*, 21 August 2009, United States, **7429**, 742913 (2009).

[4] J. BENTEROU *et al.*, "Embedded fiber-optic Bragg grating detonation velocity sensor", *Proc. SPIE*, 17-23 April 2009, Orlando, FL, United States, **7316**, 73160E-1 (2009).

[5] G. RODRIGUEZ *et al.*, "Chirped fiber Bragg grating detonation velocity sensing", *Rev. Sci. Instr.*, **84**(1), 015003 (2013).

Compression isentropique sur SPHINX

T. D'ALMEIDA - F. LASSALLE - A. MORELL - J. GRUNENWALD - F. ZUCCHINI - A. LOYEN / CEA - Gramat

L'installation SPHINX du CEA Gramat est un générateur de haute puissance pulsée de la classe 6 MA, 1µs, principalement dédié à la production de rayonnement X pour les études de durcissement de systèmes stratégiques. Dans ce mode de fonctionnement, l'impulsion de courant permet l'implosion d'une colonne de plasma par striction magnétique (Z-pinch). Cet article présente une nouvelle configuration où le champ magnétique créé par l'impulsion de courant génère la compression quasi-isentropique d'un tube métallique (liner). Pour optimiser ce régime de fonctionnement, l'impulsion de courant est mise en forme par un dispositif compact, logé sous vide en sortie du générateur. Ce dispositif, nommé DLCM (pour «*Dynamic Load Current Multiplier*») est décrit. Une synthèse des résultats issus d'une série de tirs réalisés sur un liner cylindrique en aluminium est présentée.

e développement récent de la technique utilisant un champ magnétique pulsé pour la réalisation d'expériences de compression isentropique (*ICE*, pour Isentropic Compression *Experiments*) **[1,2]** présente un intérêt considérable pour de nombreuses applications: sciences des matériaux, géophysique, astrophysique, recherche sur la fusion par confinement inertiel, etc.

Le CEA – Gramat est un des précurseurs de cette technique, avec notamment le développement d'un générateur dédié, nommé GEPI [2] (classe 4 MA, 500 ns). Le présent article décrit les études préliminaires destinées à analyser les potentialités de l'installation SPHINX pour ce type d'expériences de compression isentropique. Ces études sont mises à profit pour explorer de nouvelles configurations expérimentales actuellement non couvertes par le générateur GEPI: charges planes remplacées par des charges cylindriques, durées de rampe plus importantes, profils de rampe mis en forme par un dispositif compact, le DLCM [3], inséré entre le générateur et la charge.

Description du dispositif

Le principe de fonctionnement de ce dispositif, basé sur le schéma d'un autotransformateur, permet théoriquement de doubler le courant au niveau de la charge. Dans notre cas, cet autotransformateur fonctionne sous vide et sa grande compacité (diamètre 200 mm, hauteur 100 mm) permet d'obtenir la multiplication de courant (d'un facteur 1,1 à 1,9) sans modification de l'architecture du générateur. Une autre particularité essentielle de ce dispositif est l'extrudeur de flux qui permet d'optimiser le transfert du courant vers la charge. À la différence d'un autotransformateur classique, l'impédance de l'extrudeur du DLCM est variable, ce qui permet la mise en forme du courant. Pratiquement, cet extrudeur de flux dynamique (EFD) est formé par un réseau cylindrique de fils qui implose sous l'effet de l'impulsion de courant. Les expériences décrites ci-après sont les premières applications concrètes de ce dispositif DLCM novateur, qui permet à la fois une augmentation d'amplitude et une mise en forme du courant injecté dans la charge. L'impulsion du courant et l'épaisseur de la charge sont choisies de manière à empêcher la transformation de l'onde de contrainte en onde de choc à l'intérieur de la charge, tout en préservant la surface interne dans l'état solide sur l'échelle de temps expérimentale.



Figure 1. Coupe 2D du dispositif expérimental.



Figure 2. Profils de courant simulés et mesurés.

La **figure 1** représente schématiquement la configuration expérimentale. La partie supérieure est constituée des électrodes du DLCM et du réseau de fils de l'EFD. La charge cylindrique consiste en un liner en aluminium (hauteur 16 mm, rayons externe et interne, respectivement, de 5 mm et 3 mm) directement connecté à la sortie du DLCM et formant une ligne coaxiale avec l'électrode de retour de courant. Des mesures électriques (capteurs B-dot et bobines de Rogowski) sont implantées en divers points critiques du système. La vitesse d'implosion de la surface interne du liner est mesurée à l'aide d'un dispositif d'interférométrie laser Doppler hétérodyne **[4]**.

Résultats et discussion

La **figure 2** montre un exemple de mesures électriques obtenues en entrée du DLCM et dans la charge ICE, ainsi que les profils de courant simulés à l'aide d'un modèle de circuit équivalent dans le code MHD GORGON **[5]**.

La vitesse de la surface interne du liner en implosion est extraite par traitement des signaux bruts issus de l'interféromètre. La **figure 3** montre, pour un tir, le profil de vitesse ainsi mesuré jusqu'à 1,17 µs, instant au-delà duquel le signal est fortement altéré. Ce profil de vitesse est comparé au profil simulé dans le code hydrodynamique UNIDIM à partir du courant mesuré dans la charge. On observe un bon accord sur l'intervalle de temps d'acquisition du signal. Une analyse détaillée de ces résultats est présentée dans la référence **[6]**.

Conclusion

Une technique de chargement a été développée pour les expériences de compression isentropique sur l'installation SPHINX. Elle utilise la mise en forme de l'impulsion de courant issue du générateur par le DLCM. Les diagnostics électriques implantés ont permis un suivi optimal de la circulation du courant à travers le DLCM, ainsi qu'une mesure précise du courant circulant dans la charge de géométrie cylindrique. La mesure *in situ* de la vitesse de la surface interne du liner sur une portion significative de sa trajectoire durant son implosion est en bon accord avec les simulations effectuées à l'aide du courant expérimental mesuré dans la charge. Cette technique pourrait s'étendre à des applications telles que l'étude d'instabilités d'implosion de liners sous grandes vitesses de déformation.

Une évolution du DLCM, également à l'étude au laboratoire, consiste à rajouter en sortie du dispositif un commutateur à fermeture destiné à réduire le front de montée du courant dans la charge. S'il est validé, ce mode de fonctionnement permettra une amélioration des performances du générateur SPHINX en termes d'amplitude du courant délivré (5 MA \geq 6 à 8 MA), de durée du front de montée (1µs \geq 200 à 300 ns) et de profil (type sinus \geq type «exponentiel»).

Figure 3. Profils de vitesse d'un liner en aluminium mesurés (extrait par Transformée de Fourier Glissante – TGF– et Repliement de Phase – RP) et simulé à partir du courant expérimental.



Références

[1] C. HALL, "Isentropic compression on the Sandia Z accelerator", *Phys. Plasmas*, 7, 2069 (2000).

[2] P. L. HEREIL et al., GEPI: an ICE generator for dynamic material characterization and hypervelocity impact, in Shock Compression of Condensed Matter-2003, edited by M. D. Furnish et al., 1209 (2004).

[3] A. S. CHUVATIN, "Dynamic Current Multiplier", 14th Symposium on High Current Electronics, Tomsk, Russia, p. 232-235 (2006).

[4] O. T. STRAND *et al.*, "Compact system for high-speed velocimetry using heterodyne techniques", *Rev. Sci. Instrum.*, **77**, 083108 (2006).

[5] J. P. CHITTENDEN et al., A, "X-ray generation mechanisms in three-dimensional simulations of wire array Z-pinches", *Plasm. Phys. Controlled Fusion*, 46, B457 (2004).

[6] T. D'ALMEIDA *et al.*, "Microsecond ramp compression of a metallic liner driven by a 5 MA current on the SPHINX machine using a Dynamic Load Current Multiplier pulse shaping", *Phys. Plasmas*, **20**, 092512 (2013).

Élucidation du comportement en température d'un alliage de Pu en phase δ en limite de métastabilité

B. RAVAT - B. OUDOT - F. LALIRE - A. PERRON - F. DELAUNAY / CEA - Valduc

Au regard du diagramme de phase à l'équilibre thermodynamique, les alliages PuGa en phase δ ne sont que métastables et une concentration proche de 1 at.% en Ga apparait être expérimentalement comme une extrême limite. Caractériser et comprendre le comportement de cet alliage en température fait l'objet du travail présenté ici. Ainsi, l'étude des nombreuses transitions de phases observées au cours de la réversion en température, après transformation martensitique à basse température, a été réalisée. Ce travail s'est appuyé sur des expériences *in situ* de diffraction des rayons X (DRX) et de dilatométrie couplées à une simulation thermodynamique.

e plutonium a la particularité d'exister sous six variétés allotropiques en fonction de la température à pression ambiante, ce qui confère à cet élément une des métallurgies des plus complexes de la classification. Alors que la phase α , de structure monoclinique, est thermodynamiquement stable à température et pression ambiante, le domaine d'existence de la phase δ de structure cubique à faces centrées se situe entre 315 et 457 °C. Plus ductile et moins oxydable, la phase δ est donc métallurgiquement plus intéressante. L'adjonction d'éléments dits deltagènes comme le gallium, l'aluminium... permet de maintenir la phase δ dans un état métastable à température ambiante.

Transformation martensitique à basse température

À basse température, l'alliage PuGa 1 at.% en phase δ présente une transformation de type martensitique (transformation displacive mettant en jeu de petits déplacements atomiques parfaitement corrélés inférieurs à la distance interatomique de la phase mère et donc sans diffusion). Cette transformation génère une phase α' (fragile) qui présente la même structure cristalline que la phase monoclinique α du Pu pur avec la présence d'atomes de gallium en sursaturation dans son réseau cristallin. La transformation martensitique $\delta \rightarrow \alpha'$ est partielle et s'est révélée être, grâce aux analyses réalisées par DRX à basse température, exclusivement directe (sans étapes intermédiaires) et isotherme (dépendante du temps). Cette transformation s'accompagne aussi d'une forte diminution de volume de 20 % observée en dilatométrie à partir de -20°C, correspondant à la température de début de transformation martensitique appelée M_s (figure 1).

Réversion en température

Processus général de la réversion

Après transformation martensitique à basse température, un traitement thermique permet la réversion de l'alliage PuGa 1 at.% biphasé $\alpha' + \delta$, et donc la restauration de la phase δ initiale. Cette réversion présente plusieurs sauts de dilatation montrant des transitions de phases successives (**figure 1**). L'identification des structures cristallographiques et la détermination des taux de phases réalisées par DRX ont révélé que le processus de réversion se réalise suivant deux mécanismes différents. En effet, en plus de la réversion directe $\alpha' \ge \delta$, une réversion indirecte de la phase α' se produit, entraînant l'émergence successive des phases β et γ du Pu pur **[1]**. Ce mode de réversion indirecte implique un processus de diffusion du Ga qui est



Figure 1. Étude des changements de phases de l'alliage PuGa 1 at.% en température par dilatométrie et diffraction des rayons X *in situ*.

Figure 2. Représentation schématique du processus général de réversion en température après transformation martensitique à basse température de l'alliage PuGa 1 at.%.



également à l'origine d'un enrichissement de la phase δ en Ga (δ_e) lors de la première transition $\alpha' \geq \beta$. La seconde transition de phases observée $\beta \geq \gamma$ s'apparente a une simple transformation allotropique du plutonium pur. Finalement, la dernière transformation de phase $\gamma \geq \delta$ se produit de manière graduelle avec la montée en température et s'accompagne d'une ré-homogénéisation du gallium dans l'alliage. Une représentation schématique du processus complet est présentée sur la **figure 2**.

Compétition entre réversion directe et indirecte

Au cours de la première étape de la réversion, une compétition entre les deux mécanismes dits indirect $\alpha' \rightarrow \beta + (\delta_{\alpha})$ et direct $\alpha' \rightarrow \delta$, est observée expérimentalement. Des calculs thermodynamiques (figure 3) réalisés avec le code ThermoCalc basée sur la méthodologie CALPHAD (CAlculation PHAse Diagram) montrent qu'à partir de 75 °C ($T_0 \alpha'/\delta$: température d'équilibre entre les phase δ et α') ces deux modes de réversion sont énergétiquement possibles [2]. Il s'avère même, qu'avant cette première étape de la réversion, le système pourrait optimiser son énergie sans transformation par un simple processus de diffusion du Ga de la phase α' vers la phase δ . Cependant, malgré une force motrice très favorable, ce mécanisme est cinétiquement bloqué à cause de la très faible diffusion du Ga à ces températures relativement basses. Au-delà de 125 °C, si les calculs montrent que la réversion indirecte demeure énergétiquement la plus favorable, elle reste, elle aussi, néanmoins dépendante de la capacité du Ga à diffuser.

Quels sont donc les points clés pilotant la compétition entre réversions indirecte et directe ?

La confrontation des résultats expérimentaux et théoriques obtenus au cours de ce travail a permis d'identifier trois paramètres essentiels [1,2]:

▶ la vitesse de chauffe: sa rapidité favorise la force motrice de la réversion directe sans laisser au

gallium le temps de diffuser pour mener à une réversion indirecte énergétiquement plus favorable;

▶ le taux initial de phase α' : si celui-ci est supérieur à 75 %, une réversion totalement indirecte mènerait à un enrichissement hors équilibre de la phase δ supérieur à 4 at.% dans le domaine biphasé $\beta + \delta$: cette limite d'enrichissement implique que la part restante de phase α' à réverser doit se transformer directement en phase δ ;

▶ la concentration en Ga dans l'alliage: son augmentation provoque un déplacement de la température d'équilibre $T_{0 \alpha/\delta}$ vers les plus basses températures impliquant un accroissement de la force motrice de la réversion directe à basses températures où tout autre mécanisme énergétiquement plus favorable, mais basé sur la diffusion du Ga, est gelé (**figure 3**).

En conclusion, l'étude réalisée basée sur la complémentarité d'expériences *in situ* de dilatométrie et de DRX couplées à une simulation thermodynamique CALPHAD a permis d'élucider les mécanismes de la réversion se produisant au cours d'un traitement thermique d'un alliage de Pu faiblement allié ayant subi une transformation martensitique.



Figure 3. Valeurs des forces motrices (variation d'enthalpie libre) correspondant à différents chemins de transformation en fonction de la température et calculées pour un taux initial de phase α ' de 50%.

Références

[1] B. RAVAT, B. OUDOT, A. PERRON, F. LALIRE, F. DELAUNAY, "Phase transformations in PuGa 1 at.% alloy: Study of whole reversion process following martensitic transformation", *J. Alloys Compd.*, **580**, p. 298-309 (2013).

[2] A. PERRON, B. RAVAT, B. OUDOT, F. LALIRE, K. MOUTURAT, F. DELAUNAY, "Phase transformations in Pu–Ga alloy: Synergy between simulations and experiments to elucidate direct and indirect reversion competition", *Acta Mater.*, **61**, p. 7109-7120 (2013).

Explosifs comprimés : comportement plastique du HMX

J. VIAL - D. PICART / CEA – Le Ripault

P. BAILLY / PRISME, INSA Centre Val de Loire, Bourges

F. DELVARE / Université de Caen Basse-Normandie, UMR 6139, Caen

L'allumage des explosifs soumis à une agression mécanique (chute, impact, choc) dépend fortement du comportement des constituants (cristaux énergétiques, liant) de ces matériaux composites. Cette étude est un premier pas vers une compréhension du comportement des cristaux de HMX (octogène) lorsqu'ils sont soumis à des sollicitations quasi statiques. Nous nous appuyons sur (*i*) des observations expérimentales réalisées en temps réel et à l'échelle de la microstructure lors d'un essai inversé de compression dans la tranche et (*ii*) des simulations numériques. Nous démontrons que la réponse du matériau composite enregistrée lors d'un essai macroscopique fortement confiné correspond au comportement «isotrope moyen» des cristaux de HMX.

explosif étudié, à base de HMX (ou cyclotétraméthylène-tétranitramine), dont la composition chimique brute est $C_4H_8N_8O_8$, est hétérogène. Il est fabriqué par pressage d'un mélange de grains de HMX (~ 95 %) et d'un liant (porosité finale ~ 2 %). Les essais d'impact ont montré qu'il est difficile de prévoir *a priori* le début des réactions pyrotechniques. La sécurité des systèmes pyrotechniques passe donc par de coûteuses campagnes expérimentales. Notre objectif est de développer les modèles permettant de prédire l'allumage de ces matériaux. Notre démarche combine étroitement des expérimentations réalisées à l'échelle de la microstructure et la simulation numérique de la déformation et de l'échauffement à cette échelle.

Expérimentations

Afin de mesurer les déformations des cristaux lors d'une sollicitation, un essai de compression a été développé. L'échantillon est placé dans un montage rigide, face à un canal (**figure 1**). Une machine permet de pousser l'échantillon et le contraint à contourner l'angle formé par l'entrée du canal. Dans cette zone, le matériau est fortement cisaillé. Le montage est fermé par une vitre. Elle confine l'échantillon et permet l'observation par un microscope optique à fort grandissement. L'expérience met en évidence le développement d'un processus de plasticité dans certains des grains de HMX (**figure 2**).

Représentation numérique du matériau

Les grains ont une distribution granulométrique allant de 1 à 600 µm. Nous choisissons une représentation bi-phasique du matériau. Les plus gros grains, de taille supérieure à 200 µm et représentant 50 % en volume, sont répartis dans une matrice homogène (dans la réalité formée des plus petits grains, du liant et de la porosité). L'analyse des images ne permet pas de retrouver automatiquement la forme des grains de HMX. Pour cela, les grains sont assimilés à des ellipses. Leurs centre et orientation sont déterminés manuellement sur les images.

Concernant le comportement mécanique plastique des grains de HMX, trois hypothèses ont été testées. Les deux premières proviennent d'études



Figure 1. Schématisation de l'essai de compression dans la tranche. L'échantillon (10x10x3 mm³) en bleu est disposé dans un montage rigide et fixe, face à un canal. Il est poussé par un piston, actionné par une machine. Une vitre supérieure permet le confinement de l'échantillon et l'observation de sa microstructure.



Figure 2. Observation d'un grain avant (a) et après compression (b), avec manifestation de sa déformation plastique (bandes rectilignes).

antérieures **[1,2]** où le comportement est supposé élastique et parfaitement plastique avec une limite d'élasticité de 135 ou 260 MPa. La troisième hypothèse suppose que la courbe contrainte-déformation enregistrée sur un échantillon massif du composite, lors d'un essai triaxial fortement confiné, traduit le comportement isotrope plastique «moyen» du HMX. La limite d'élasticité est égale à 70 MPa et l'écrouissage isotrope est non linéaire. La contrainte équivalente de 260 MPa est atteinte pour une déformation plastique de 0,25.

Validation du comportement

La validité de l'hypothèse d'un comportement élastique plastique non linéaire du HMX est testée en comparant les images obtenues lors d'un essai de compression dans la tranche avec la simulation (figure 3). Cette dernière a été réalisée avec le code aux éléments finis Abaqus, en régime quasi-statique et pour une cinématique 2D plane. La plupart des grains qui sont de couleur verte (resp. bleue) sont en phase élastique (resp. déformation plastique non nulle) à la fois dans la simulation et dans l'essai. Par contre, les grains de couleur rouge sont élastiques dans la simulation alors que l'expérience montre des bandes de plasticité et inversement pour les grains de couleur orange. La cartographie a été obtenue avec notre hypothèse. Un bon accord est observé notamment en constatant que (i) quelques instants après tous les grains oranges plastifient durant l'essai et que (*ii*) le plus gros grain rouge se situe dans une zone où, expérimentalement, l'endommagement est important (ce phénomène n'est pas modélisé ici). L'accord calcul/expérience est moins bon pour les autres hypothèses.

Perspectives

Cette étude a permis de mieux comprendre le comportement élasto-plastique des cristaux de HMX [3]. À faible confinement, la matrice est bien plus déformable que le HMX. La modélisation du comportement de ce constituant, lui-même hétérogène, doit maintenant être améliorée. Ses grandes déformations sont probablement le siège des mécanismes dissipatifs pouvant conduire, par frottement des plus petits grains entre eux, à un échauffement du matériau et à son allumage. Enfin, l'amélioration des simulations devra passer par une description plus réaliste et donc tridimensionnelle de la microstructure.



Figure 3. (a): Simulation numérique de l'essai. (b): État mécanique des plus gros grains pour une limite d'élasticité de 70 MPa et un écrouissage isotrope non linéaire. Un bon accord expérience/calcul est observé pour les grains de couleurs verte et bleue; un mauvais accord pour les grains rouges et orange. Si le calcul est poursuivi quelques instants, seuls les trois grains rouges persistent.

Références

[1] R. MENIKOFF, T. SEWELL, "Constitutent properties of HMX needed for meso-scale simulations", *Combust. Theor. Model.*, **6**, p. 103–125 (2002).

[2] S. J. P. PALMER, J. E. FIELD, "The deformation and facture of β-HMX", *Proc. R. Soc.*, **A 383**, p. 399–407 (1982).

[3] J. VIAL, D. PICART, P. BAILLY, F. DELVARE, "Numerical and experimental study of the plasticity of HMX during a reverse edgeon impact test", *Model. Simul. Mater. Sci. Eng.*, **21**(4), 045006 (2013).

Un mode de vortex dans des pétales ferromagnétiques

J. NEIGE - T. LEPETIT - N. MALLÉJAC - A. L. ADENOT ENGELVIN / CEA – Le Ripault

A. THIAVILLE / Laboratoire de physique des solides, CNRS UMR 8502, Université Paris-Sud, Orsay

N. VUKADINOVIC / Dassault Aviation, Saint-Cloud

Les composites à base d'inclusions ferromagnétiques sont utilisés comme absorbants électromagnétiques dans de nombreuses applications de télécommunications (antennes, téléphones mobiles). Parmi les nombreuses charges envisageables, les pétales ferromagnétiques ont attiré l'attention de la communauté scientifique en raison de leur rapport de forme qui permet d'obtenir une perméabilité magnétique élevée. Étant donné leur taille, on pourrait s'attendre à ce que ces particules présentent une structure d'aimantation multi-domaines. On observe généralement deux résonances, couramment interprétées de la façon suivante : la résonance basse fréquence, attribuée aux parois de domaines, et la résonance haute fréquence assignée aux domaines. Aucune preuve expérimentale de cette interprétation n'avait toutefois été apportée. Dans ce travail, nous démontrons que la résonance basse fréquence peut être interprétée comme un mode de déplacement de vortex.

es pétales considérés (figure 1a) ont des épaisseurs inférieures à 1 µm et un rapport d'aspect β (rapport de l'épaisseur sur la dimension latérale) entre 1/10 et 1/100 [1]. Des composites ont ensuite été réalisés et des observations en microscopie électronique à balayage (MEB) montrent un alignement préférentiel des pétales parallèlement au plan du composite (figure 1b).

La structure magnétique d'un pétale est décrite par la donnée du vecteur aimantation en tout point du pétale. Lorsque le pétale est soumis à un champ magnétique hyperfréquence dans une certaine direction, seule la composante de l'aimantation locale perpendiculaire au champ excitateur contribue au spectre de perméabilité. Un exemple de ce dernier pour des composites à base de pétales ferromagnétiques en Fe₈₀Ni₁₅Mo₅ (FeNiMo) et Fe est présenté sur la figure 2 pour un champ excitateur respectivement parallèle (configuration parallèle) et perpendiculaire (configuration perpendiculaire) au plan des pétales [2]. Ainsi, contrairement au cas du Fe qui ne présente qu'une seule résonance à 320 MHz, on constate la présence de deux pics de résonance à 75 MHz et 2,8 GHz pour l'échantillon en FeNiMo dans le cas où le champ hyperfréquence excitateur est appliqué dans le plan des pétales. On remarque également que la contribution basse fréquence disparaît lorsque le champ excitateur est appliqué perpendiculairement au plan des pétales. La contribution haute fréquence est en revanche bien présente dans les deux cas (bien que légèrement



Figure 1. (a): image MEB d'un pétale ferromagnétique -(b): image MEB d'un composite réalisé avec ces pétales.

décalée). Ces mesures permettent donc de conclure que le pic basse fréquence est dû à une zone du pétale où l'aimantation est orientée selon la normale au plan de celui-ci: une imagerie magnétique d'un pétale semble donc être la solution à privilégier pour trouver où se situent les zones où l'aimantation peut avoir cette orientation caractéristique.

L'observation par microscopie à force magnétique (MFM) d'un pétale de petite taille permet en effet d'appréhender la structure magnétique de la particule. Sur la **figure 3b**, on constate que la particule est constituée de domaines en hélice au centre desquels évolue un vortex. La zone d'aimantation recherchée étant parallèle à la normale au plan du pétale, il reste deux possibilités: soit un vortex magnétique (figures 3a et 3b où l'aimantation du coeur de vortex est normale au plan de la feuille), soit une paroi de

domaine magnétique de type Bloch (schématisée en bleu sur la **figure 3b**) où l'aimantation pointe également de façon locale perpendiculairement au plan du pétale.

L'observation des fréquences de résonance ainsi que des simulations micromagnétiques nous ont conduits à écarter la piste de résonance de paroi. Afin d'évaluer la pertinence de l'hypothèse du vortex, nous avons utilisé un modèle de résonance de vortex [3]. Dans ce modèle, le coeur du vortex est assimilé à une particule qui décrit un mouvement de précession circulaire autour du centre de la particule à la pulsation propre ω_0 (figure 3a) sous l'action du champ magnétique excitateur et de la force de rappel générée par le champ démagnétisant. Ce dernier est associé aux charges magnétiques apparaissant sur le bord du domaine circulaire lors du déplacement du coeur de vortex.

Ce modèle décrit très bien les courbes expérimentales de la fréquence de résonance basse fréquence en fonction du rapport de forme β , du champ statique appliqué et même de la composition du pétale.

Ces travaux représentent une avancée significative dans la compréhension des composites à base de pétales ferromagnétiques. Par ailleurs, il a été montré que la perméabilité de composites à base de pétales ferromagnétiques s'explique principalement par la perméabilité d'un pétale isolé [4]. Une ingénierie de la résonance basse fréquence est maintenant envisageable sur la base du modèle de résonance de

Figure 2. Spectre de perméabilité de composites à base de pétales pour deux compositions de pétale (FeNiMo et Fe).



vortex. Il faut souligner qu'un tel mode de vortex n'avait, jusqu'à présent, été mis en évidence que dans le cas de nanoplots magnétiques spécialement fabriqués. L'existence et la stabilité de modes de vortex dans des particules aussi imparfaites que des pétales ferromagnétiques est une observation remarquable.



Figure 1. (a): schéma illustrant le déplacement du coeur de vortex dans le modèle [3] - (b): image MFM d'un pétale sur laquelle ont été schématisés le coeur de vortex (point rouge au centre) et les parois des domaines en hélice (en bleu). Dans ces deux zones du pétale, l'aimantation pointe perpendiculairement hors du plan.

Références

[1] R. M. WALSER, W. WIN, P. M. VALANJU, "Shape-optimized ferromagnetic particles with maximum theoretical microwave susceptibility", *IEEE Trans. Magn.*, **34**, 1390 (1998).

[2] J. NEIGE, T. LEPETIT, N. MALLÉJAC, A.-L. ADENOT-ENGELVIN, A.THIAVILLE, N.VUKADINOVIC, "Evidence of an embedded vortex translation mode in flake-shaped ferromagnetic particle composites", *Appl. Phys. Lett.*, **102**, 242401 (2013).

[3] K. Y. GUSLIENKO *et al.*, "Eigenfrequencies of vortex state excitations in magnetic submicron-size disks", *J. Appl. Phys.*, **91**, 8037 (2002).

[4] J. NEIGE, Élaboration, caractérisation et modélisation d'un composite à base de pétales ferromagnétiques pour des applications hyperfréquences, Thèse de l'Université François Rabelais de Tours (2013).

Élaboration de composites carbone/carbone denses

A. ALLEMAND - P. DAVID / CEA – Le Ripault

A. DEKEYREL - M-.A .DOURGES - R. PAILLER - A. ALLEMAND / Laboratoire des composites thermostructuraux (LCTS), UMR 5801 CNRS – Université de Bordeaux 1 – SNECMA – CEA, Pessac

Des composites carbone/carbone (C/C) haute densité (>1,80) ont été élaborés grâce à un procédé multi-étapes. Celui-ci consiste à pré-densifier des préformes de fibres de carbone pour atteindre une densité élevée en seulement quatre cycles d'imprégnation/pyrolyse d'un précurseur de carbone liquide (le brai). L'influence du procédé sur la densité et la conductivité thermique est discutée, en prenant en compte les caractéristiques microstructurales des matrices de carbone à l'échelle submicronique.

es composites C/C sont capables de conserver leurs propriétés dans des conditions extrêmes. Les procédés de fabrication incluent de nombreux cycles d'imprégnation de la préforme de carbone par du brai liquide, puis de pyrolyse de cette préforme pour obtenir un matériau dense (cycles dits I/P). Ces cycles sont réalisés en autoclave sous forte pression (100 MPa), d'où un coût d'élaboration très élevé. Ce travail original porte sur la mise au point d'un procédé alliant une étape de pré-densification et quatre cycles I/P sous pression modérée (< 10 MPa) pour élaborer des composites C/C denses aux propriétés thermiques modulées **[1]**.

Élaboration des composites

L'élaboration met en œuvre la densification de préformes de fibres de carbone, aiguilletées (structure « 2,5 D ») présentant des porosités de gammes de tailles différentes. Le brai utilisé pour les étapes d'I/P est un résidu de la distillation du pétrole, précurseur industriel classique : il produit un carbone graphitable avec un fort rendement (M50-MARATHON). Trois méthodes de pré-densification permettent de moduler la distribution en taille du réseau poreux:

Échantillon A: la préforme brute est imprégnée par une méthode d'aspiration d'une barbotine de poudres de carbone de taille submicronique (Luvomaxx®, de Lehmann und Voss). Les macropores sont remplis par les particules sphériques permettant de réduire et de redistribuer de manière homogène la porosité;

▶ Échantillon B: la préforme brute est consolidée par un dépôt de carbone obtenu par caléfaction au CEA – Le Ripault. Ce procédé de densification rapide consiste à immerger la préforme dans du toluène et à chauffer celle-ci par induction, ce qui craque le toluène et dépose autour des fibres et des fils de la préforme du C dense [2]. Les porosités en intra-fil sont assez bien comblées mais un réseau de pores encore larges subsiste;

 Échantillon C: la préforme brute est imprégnée par un brai de synthèse (ARA24R – MITSUBICHI) qui présente l'avantage de posséder un fort rendement en carbone graphitable, puis, après un cycle

Échantillon	Porosité ouverte mesurée par pesée dans l'eau (%)	Densité apparente	Conductivité thermique
C/C _A	12	1,85	24
C/C _B	11	1,81	26
C/C _c	12	1,81	48
C/C _D	18	1,70	52

Tableau. Porosité, densité et conductivité thermique des échantillons élaborés.



Figure 1. Matrice du composite C/C_n. **Figure 2.** Matrice du composite C/C_n.

d'I/P, la préforme est imprégnée par une barbotine de poudres Luvomaxx[®]; les porosités en intra-fil sont comblées par le résidu de brai et le réseau de pores en inter-fils et inter-plans est redistribué de la même façon que pour l'échantillon A.

Quelle que soit l'étape de pré-densification la morphologie des réseaux poreux est favorable à une densification par un brai.

Les cycles de densification par le brai M50 sont effectués dans un autoclave en suivant un programme optimisé pour ce précurseur [1]. La première phase correspond à la mise sous vide suivie de la chauffe à 200 °C qui permet le ramollissement du brai. Ensuite, un palier de six heures est effectué à 430 °C (pression 8 MPa). Enfin, on effectue une montée jusqu'à 700 °C (pression 10 MPa). Une étape de carbonisation à 1100 °C complète la transformation permettant un gain de densité et une meilleure organisation submicronique. Une transformation finale est obtenue grâce à l'étape de graphitation à 2500 °C. Le nombre total d'I/P pour les échantillons A, B et C est de quatre. Un échantillon, noté D, ayant seulement subi les quatre étapes d'I/P, est préparé afin d'évaluer l'intérêt de l'étape de pré-densification.

Caractéristiques des C/C

Le **tableau** présente les principaux résultats. Ils montrent clairement l'intérêt de la pré-densification pour obtenir des composites C/C denses (> 1,80). L'échantillon C/C_A présente la meilleure densification. Cela peut s'expliquer par la distribution de la porosité après l'étape de pré-densification, constituée de pores ouverts de faible taille (de 0,05 à 0,3 µm), contrairement aux échantillons C/C_B ou C/C_C (qui présentent deux populations de larges pores de 1 à 5 µm et de ~ 50 µm). L'imprégnation du brai dans la préforme est favorisée grâce aux forces de capillarité. L'architecture du réseau poreux est une donnée clé de l'efficacité de densification.

Nous avons déterminé la conductivité thermique de ces échantillons à partir des mesures de diffusivité thermique obtenues à l'aide d'une méthode laser flash [3]. Ainsi, les conductivités thermiques de C/C_c et C/C_p sont comparables, et supérieures à celles de C/C_A et C/C_B. L'échantillon C/C_D, de densité la plus faible, présente une conductivité thermique la plus élevée. Pour comprendre ce paradoxe il faut observer au microscope électronique à transmission (MET) les matrices. Celles de C/C_A et C/C_B sont constituées de petits domaines graphitiques arrangés aléatoirement (figure 1); à l'inverse, celles de C/C_c ou C/C_D sont constituées de larges domaines graphitiques orientés parallèlement à la surface des fibres (figure 2). Les domaines les plus larges et les mieux orientés induisent moins de résistance thermique, ce qui explique les propriétés obtenues.

Conclusion

Cette étude a montré qu'il est possible d'élaborer des composites C/C relativement denses à pression modérée. Une étape de pré-densification est nécessaire; elle permet d'orienter le choix de la conductivité thermique finale du composite.

Références

[1] A. DEKEYREL, M-.A. DOURGES, P. WEISBECKER, R. PAILLER, A. ALLEMAND, "Characterization of carbon/carbon composites prepared by different processing routes including liquid pitch densification process", *Composites: Part A*, **49**, p. 81–88 (2013).

[2] B. BERNARD, « Procédé de densification d'un substrat poreux par une matrice contenant du carbone», EU Patent 0 495 700 A1; 1992.

[3] B. HAY *et al.*, "New apparatus for thermal diffusivity and specific heat measuements at very high temperature", *Int. J. Thermophys.*, **27**, p. 1803-1815 (2006).

Nanoparticules de platine supportées sur carbone : catalyseur pour pile à combustible

 P. BUVAT - J. BIGARRÉ - A. C. FERRANDEZ / CEA – Le Ripault
 C. COUTANCEAU - S. BARENTON / Institut de chimie des milieux et matériaux de Poitiers (IC2MP), UMR CNRS 7285, Université de Poitiers
 D. DRU / ADEME, Angers

Face à l'augmentation de la demande énergétique mondiale, aux problèmes environnementaux et à la diminution des réserves énergétiques d'origine fossile, l'émergence de sources d'énergie peu polluantes et renouvelables devient un enjeu économique majeur. L'hydrogène mis en oeuvre au sein de piles à combustible à membranes échangeuses de protons (PEMFC) est une voie particulièrement prometteuse pour les applications transports ou stationnaires. Les PEMFC sont des générateurs électriques à rendement élevé qui utilisent l'hydrogène comme combustible. Elles nécessitent néanmoins des catalyseurs pour accélérer les réactions d'oxydo-réduction qui produisent l'énergie électrique. Les électrodes actuellement utilisées sont très fortement chargées en platine. Le CEA – Le Ripault mène des études pour réduire le chargement en platine, voire s'affranchir de ce métal noble et cher.

a pile à combustible PEMFC est appelée à jouer un rôle majeur dans la nouvelle économie de l'hydrogène. Cependant, dans le domaine du transport et, dans une moindre mesure, pour les applications stationnaires, les systèmes développés à ce jour souffrent de la comparaison avec les solutions plus classiques (moteurs thermiques) en termes de coût. Leur réduction nécessite de développer des composants du cœur de pile dont la mise en œuvre repose sur des procédés industrialisables à moindre coût. Elle suppose également le développement de matériaux innovants dont les propriétés fonctionnelles répondent encore mieux aux cahiers des charges, tout en intégrant de nouvelles fonctionnalités, notamment dans le domaine des couches actives, très gourmandes en platine et donc très coûteuses.

Problématique

Classiquement, les couches actives des électrodes de PEMFC sont préparées à partir d'une solution d'électrolyte conducteur protonique telle que du Nafion® et contenant des nanoparticules de platine déposées sur une poudre de carbone. Cependant, en fonctionnement, une partie importante (~ 20%) du platine n'est pas actif. Par ailleurs, une perte d'activité du platine est observée au cours du temps, liée à des phénomènes d'oxydation du support carboné et de migration du platine dans la membrane.

Enfin, on observe des phénomènes de coalescence des nanoparticules de platine conduisant à une diminution de la surface de platine. Pour pallier ces phénomènes, des quantités initiales de platine importantes (0,2-0,6 g.kW⁻¹) sont donc utilisées, ce qui nuit, dans un contexte d'utilisation rationnelle de ce métal noble, rare et cher, à la viabilité économique de ce type d'architecture.



Figure 1. Concept du point triple.

Nouvelles architectures catalytiques

Les travaux menés au CEA - Le Ripault consistent à synthétiser de nouveaux complexes catalytiques à base de platine réunissant des propriétés de conduction protonique et électronique. L'originalité de ces travaux vise à développer des matériaux au sein desquels la phénoménologie du point triple illustrée sur la figure 1 (cohabitation d'une zone de contact platine - carbone (conduction électronique) - conducteur protonique) est transposée à l'échelle moléculaire. Pour ce faire, le catalyseur (platine ou autre) est associé au support conducteur électronique (support carboné) et à un polymère conducteur ionique à travers un lien covalent assurant des fonctions de transport respectivement électronique et protonique (figure 2). Ces matériaux doivent permettre de favoriser les transferts de charges électriques et ioniques au sein des couches actives, tout en limitant la coalescence des nanoparticules, avec à terme, une réduction du chargement en platine et une meilleure durabilité des systèmes.

Ces études sont basées sur des travaux de synthèse organique pour synthétiser les entités conductrices protoniques et électroniques, fonctionnaliser les surfaces de platine, assurer le greffage chimique sur le platine et effectuer le greffage sur les supports carbonés. La synthèse des nanoparticules supportées sur carbone est développée en collaboration avec l'IC2MP.

Des composés originaux ont été obtenus par greffage de polymères conducteurs protoniques de type polystyrène sulfonate de sodium sur des nanoparticules de platine fixées sur des particules de carbone **[1,2]**. Des techniques de «*grafting onto*» par postgreffage ou greffage *in situ*, ainsi que des techniques de «*grafting from*» (polymérisation à partir d'un amorceur greffé) du polymère, ont permis d'obtenir une large gamme de matériaux avec des densités de greffage variable (nombre de greffons à la surface du platine, mais aussi, masses moléculaires du polymère greffé). La structure chimique de ces composés originaux a été caractérisée par analyse RMN, infra rouge, Raman, et XPS.

Propriétés fonctionnelles des architectures catalytiques

Les propriétés électrochimiques de ces composés, déterminées par voltamétrie cyclique, électrode à disque tournant ou disque anneau montrent une excellente stabilité de la couronne organique jusqu'à 1 V, tension maximale de la pile, une capacité de transfert de charge et surtout de conduction protonique renforcée malgré une surface active de platine naturellement diminuée par le greffage [3,4].

Des premières électrodes de pile à combustible ont été réalisées. Les tests en pile, montrent que les performances de ces nouveaux complexes sont supérieures à celles que l'on obtient avec une simple dispersion de C/Pt dans un ionomère tel que le Nafion[®]. Ces résultats valident le concept de catalyseurs polyfonctionnels sous tendu par ces travaux. Ils permettent par ailleurs d'envisager de développer des couches actives sans Nafion® avec une activité catalytique renforcée. Ces travaux originaux, en association avec les développements du CEA – Le Ripault sur les membranes hybrides composites, ouvrent ainsi la voie à des électrodes sans Nafion®.

Conclusion

Le CEA – Le Ripault a structuré une importante activité de R&D, en partenariat avec des industriels et des partenaires académiques au travers de programmes collaboratifs, autour des matériaux de cœur de pile de type PEMFC. Dans le domaine des catalyseurs, de nouveaux complexes polyfonctionnels conducteurs ioniques, électroniques et dotés d'une activité électrocatalytique vis-à-vis de la réduction de l'oxygène et de l'oxydation de l'hydrogène ont été développés. Ils permettront de réduire le chargement en platine des couches actives, contribuant ainsi à réduire sensiblement son impact sur les coûts.



Figure 2. Complexes multifonctionnels électrocatalytiques conducteurs électriques et protoniques. (a) : représentation moléculaire - (b) : morphologie des complexes (image par microscopie électronique à transmission - MET).

Références

[1] P. BUVAT, A.-C. FERRANDEZ, C. COUTANCEAU, S. BARENTON, « Procédé de préparation de particules aptes à catalyser la réduction de l'oxygène ou l'oxydation de l'hydrogène conductrices de protons», Brevet français N°11 60115 déposé le 07 novembre 2011.

[2] P. BUVAT, A.-C. FERRANDEZ, C. COUTANCEAU, S. BARENTON, « Procédé de préparation de particules aptes à catalyser la réduction de l'oxygène ou l'oxydation de l'hydrogène conductrices de protons par greffage à leur surface de polymères conducteurs de protons», Brevet français, n°11 60117 déposé le 07 novembre 2011.

[3] A.-C. FERRANDEZ *et al.*, "Pt Particles Functionalized on the Molecular Level as New Nanocomposite Materials for Electrocatalysis", *Langmuir*, **28**, p. 17832–17840 (2012).

[4] A.-C. FERRANDEZ *et al.*, "Chemical Functionalization of Carbon Supported Metal Nanoparticles by Ionic Conductive Polymer via the 'Grafting From' Method", *Chem. Mater.*, **25**, p. 3797-3807 (2013).

Transport de charges dans un électrolyte solide pour piles à combustible : apports des simulations multi-échelle

J. HERMET - F. BOTTIN - M. TORRENT - G. GENESTE / CEA – DAM Île-de-France G. DEZANNEAU / École centrale de Paris

Les piles à combustibles constituent une voie prometteuse pour l'émergence de nouvelles solutions de stockage et de transformation de l'énergie. Une compréhension fine de la physicochimie des membranes conductrices ioniques ou protoniques, qui en sont le coeur, s'avère indispensable pour les optimiser. Un paramètre important à maîtriser est le coefficient de diffusion des ions au sein de ces membranes. Une approche multi-échelle, alliant calculs *ab initio* – nécessaires à la compréhension et la détermination des mécanismes élémentaires – et simulations Monte Carlo Cinétique – permettant la prédiction du coefficient de diffusion et alimentée par les données ab initio, a permis de modéliser la diffusion des ions O²⁻ et des protons dans le cérate de baryum (BaCeO₃) dopé avec du gadolinium, un matériau ayant de fortes potentialités en tant qu'électrolyte pour piles à combustible à oxyde solide (SOFC) ou conductrice protonique (PCFC). La complexité du système – un solide de basse symétrie – rend nécessaire ce type d'approche, qui permet de comprendre comment le coefficient de diffusion varie avec la température et la concentration en dopants.

es piles à combustible (PAC) sont des dispositifs électrochimiques qui transforment en électricité et en chaleur l'énergie d'une réaction d'oxydoréduction entre un combustible (généralement de l'hydrogène) et l'oxygène. L'optimisation



Figure 1. Structure orthorhombique du cérate de baryum, optimisée par calculs *ab initio* DFT.

01 et 02 désignent les deux types d'oxygène dans cette structure : apical et équatorial. La direction **b** est la direction apicale. Le plan (**ac**) est le plan équatorial.

des différentes parties d'une PAC nécessite, à l'échelle microscopique, une analyse détaillée des phénomènes qui s'y déroulent. En particulier, il est nécessaire de bien comprendre les mécanismes de migration des porteurs de charge dans l'électrolyte. Ces porteurs de charges peuvent être, selon le type de PAC, des ions oxydes O²⁻ qui diffusent par l'entremise de lacunes d'oxygène, ou des protons H⁺ localisés sur des sites interstitiels sous la forme de groupements OH. Nous cherchons à comprendre comment ces porteurs diffusent dans un matériau qui présentent un des niveaux les plus élevés de conduction protonique, le cérate de baryum, BaCeO₃, dopé sur son site Ce par un élément trivalent (gadolinium). Ce dopage aliovalent a pour but de créer, par compensation de charges, des lacunes d'oxygène en très forte concentration dans le matériau. Les protons sont obtenus par hydratation du matériau dopé et dissociation de l'eau dans les lacunes d'oxygène. La grandeur macroscopique à déterminer est le coefficient de diffusion des protons H⁺ et des ions oxydes O²⁻.

La modélisation du transport protonique et anionique dans ce type de système peut être faite en deux étapes :

▶ détermination, à l'aide de calculs *ab initio*, des paramètres qui contrôlent la diffusion à l'échelle microscopique, c'est-à-dire de la surface d'énergie vue par le proton et la lacune d'oxygène dans le matériau, ce qui permet d'accéder aux barrières d'énergie que le défaut doit franchir pour diffuser d'un site stable à un autre [1]. Il s'agit de calculs sans aucun paramètre



ajustable, dans lesquels le gaz d'électrons est traité, dans le cadre de la mécanique quantique, par le biais de la théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT). Les calculs ont été effectués avec le code ABINIT [2];

simulation du transport à une échelle plus large, en temps et espace, par le biais de simulations Monte Carlo Cinétique (MCC) [3].

Le cas du cérate de baryum est complexe, car c'est un solide de basse symétrie: il s'agit d'un oxyde de structure pérovskite qui cristallise dans une structure orthorhombique (groupe d'espace *Pnma*), avec trois systèmes de « tilts » (les octaèdres d'oxygènes sont tournés de façon relativement rigides autour des trois axes pseudocubiques de la structure). La **figure 1** donne un aperçu de la complexité de la structure étudiée.

Pour les défauts envisagés (protons, lacunes d'oxygène), cette basse symétrie rend de nombreux sites stables non équivalents, et la surface d'énergie potentielle qui en résulte est complexe. Des calculs *ab initio* intensifs ont néanmoins permis de l'explorer de façon exhaustive et de fournir les énergies des différents sites stables **[4]**, ainsi que les chemins d'énergie minimum **[1]**, et donc les barrières d'énergie séparant ces sites.

Les protons, qui apparaissent dans leur site stable sous la forme de groupements OH, diffusent au sein de cet électrolyte par le biais de trois mécanismes: (*i*) réorientation (la liaison OH tourne d'environ 90°); (*ii*) transfert intra-octaédrique (le proton rompt la liaison OH et va se lier à un autre atome d'oxygène appartenant au même octaèdre); (*iii*) transfert interoctaédrique (le proton rompt la liaison OH et va se lier à un autre atome d'oxygène appartenant à un autre octaèdre). De façon assez inattendue, les calculs *ab initio* ont montré que dans cet oxyde de basse symétrie, le transfert inter-octaédrique peut devenir, dans certains cas, plus favorable que le transfert intra-octaédrique.

Les barrières d'énergie déduites des calculs ab initio ont ensuite été utilisées comme données d'entrée de simulations MCC. Nous avons simulé la diffusion des protons et des ions oxydes en faisant varier la température et la concentration en dopants. La méthode de Monte Carlo Cinétique est un outil permettant une résolution numérique de l'équation qui contrôle l'évolution temporelle des systèmes hors équilibre thermodynamique : l'équation maîtresse. Ici, elle nous permet tout aussi bien de simuler la diffusion des ions à l'équilibre que hors équilibre (en appliquant un champ électrique externe). L'analyse des trajectoires obtenues (plusieurs millions de pas en général) permet d'accéder au coefficient de diffusion, et/ou à la mobilité des porteurs.

La figure 2 montre l'évolution des coefficients de diffusion des protons et des ions oxydes pour différentes concentrations en dopants à l'aide de la loi d'Arrhénius. Ces tracés mettent en évidence l'influence de la concentration en dopants sur la mobilité des ions dans l'électrolyte: les ions oxydes sont freinés par la présence de dopants qui se comportent comme des pièges. En revanche, l'effet des dopants sur la mobilité protonique est plus complexe : globalement, les dopants forment des pièges peu profonds pour les protons, mais ils contribuent également à éliminer certains obstacles naturels à la diffusion, liés aux distorsions de la structure orthorhombique du matériau. La diffusion protonique est plutôt isotrope alors que la diffusion anionique est fortement favorisée dans les plans équatoriaux (figure 1).

Cette approche «multi-échelle» apporte ainsi un éclairage totalement «*ab initio*» de la diffusion des ions dans les solides, et s'avère extrêmement prometteuse en vue de guider la réalisation et/ou l'optimisation des électrolytes solides pour les piles à combustible.

Références

[1] J. HERMET, M. TORRENT, F. BOTTIN, G. DEZANNEAU, G. GENESTE, "Hydrogen diffusion in the protonic conductor $BaCe_{1-x}Gd_xO_{3-x/2}$ from density functional theory", *Phys. Rev. B*, **87**, 104303 (2013).

[2] <u>http://www.abinit.org</u>

[3] J. HERMET, F. BOTTIN, G. DEZANNEAU, G. GENESTE, "Kinetic Monte Carlo study of protonic diffusion and conduction in Gddoped BaCeO₃", *Solid State Ionics*, **252**, p. 48-55 (2013).

[4] J. HERMET, F. BOTTIN, G. DEZANNEAU, G. GENESTE, "Thermodynamics of hydration and oxidation in the proton conductor Gd-doped barium cerate from density functional theory calculations", *Phys. Rev. B*, **85**, 205137 (2012).

Impacts hypervéloces sur du graphite : expériences et simulations

D. HÉBERT - G. SEISSON - I. BERTRON - J.-M. CHEVALIER - L. HALLO / CEA - Cesta

L. VIDEAU - P. COMBIS / CEA – DAM Île-de-France

F. GUILLET / CEA – Le Ripault

M. BOUSTIE / ENSMA, Institut PPRIME, Université de Poitiers

L. BERTHE / ENSAM ParisTech, Paris

La modélisation des impacts hypervéloces couvre une large gamme d'applications, dont la protection de satellites contre les débris spatiaux et celle d'équipements au sein des lasers de puissance tels que le LMJ. Le carbone, utilisé dans de nombreux matériaux composites, présente ainsi un fort intérêt. La compréhension de son comportement est donc une étape indispensable pour interpréter et simuler l'endommagement dans les composites à l'échelle mésoscopique. Nous présentons ici des résultats expérimentaux d'impacts à plus de 4 km/s d'une bille d'acier sur un graphite poreux. Des tomographies ont permis d'observer que les débris de la bille d'acier étaient présents sous la surface endommagée du matériau. Les simulations numériques permettent d'interpréter et de restituer les principaux phénomènes. Nous montrons enfin l'intérêt d'expériences de choc laser pour ajuster certains coefficients du modèle.

e comportement des métaux sous impacts hypervéloces a été étudié depuis de nombreuses années, mais les publications concernant les matériaux fragiles sont plus rares. Toutefois, en raison de leur utilisation croissante, les matériaux composites à base de carbone ouvrent un nouveau domaine d'études [1]. Mais, sur le plan de la modélisation, ils nécessitent une



Figure 1. Reconstructions volumétriques à partir d'une tomographie d'échantillon testé sur MICA (impact à 4100 m/s). Les restes du projectile sont en rouge. L'échantillon est en gris transparent.

bonne compréhension du comportement de leurs constituants, et notamment le carbone. Ainsi, pour répondre au besoin de mieux comprendre le comportement du graphite sous impacts hypervéloces, nous présentons une étude expérimentale et les simulations associées [2]. Le matériau considéré est un graphite commercial, macroscopiquement homogène et isotrope, et qui contient environ 20% de porosité.

Essais MICA

Des expériences d'impact de billes ont été réalisées avec le lanceur MICA, situé au CEA - Cesta, qui permet de projeter une bille en acier de diamètre 0,5 mm jusqu'à 5 km/s. Nous considérons ici des impacts en incidence normale. Les cratères sont ensuite analysés par tomographie X, méthode non destructive qui permet de voir l'état de fissuration, mais qui a également permis de révéler la présence de débris de bille sous la surface du cratère (**figure 1**). Le piégeage du projectile dans du carbone avait déjà été signalé [3], mais pour des vitesses d'impact sensiblement plus faibles (600 à 1500 m/s), et aucune interprétation de ce mécanisme n'était proposée. Les simulations hydrodynamiques présentées ci-après ont pour but de clarifier cette question.

Figure 3. Simulation du tir laser à 5 TW/cm² (tache focale 2 mm). Les images (a) et (b) présentent sur leur partie gauche une coupe du cratère obtenue par tomographie X; les parties droites représentent les résultats de simulations réalisées avec deux jeux de paramètres pour le modèle de Weibull qui donnaient des résultats identiques pour l'essai MICA (les zones bleues sont intactes et les zones rouges sont endommagées).

Modélisation, simulations et validation

Nous utilisons un modèle élastoplastique poreux ajusté à partir d'expériences de chocs de plaques et de compaction statique **[4]**. La rupture fragile est traitée par un modèle de Weibull: dans le régime de traction dynamique, cette approche probabiliste permet de prendre en compte une dépendance à la vitesse de déformation $\dot{\epsilon}$. Ces modèles ont été implémentés dans le code de dynamique rapide Hésione. Les simulations 2D axi présentées ici ont été faites avec un schéma *eulérien*.

La simulation des essais MICA met en évidence un mouvement de débris de graphite derrière le projectile, conduisant au rebouchage du cratère (**figure 2**). Ce résultat est permis par le modèle de Weibull, et le valide dans la gamme $\dot{\varepsilon} \sim 10^5$ s⁻¹.

Une expérience complémentaire a été réalisée avec le laser LULI2000 de l'École polytechnique, où la focalisation du faisceau sur l'échantillon permet d'atteindre un régime différent ($\dot{\epsilon} \sim 10^6 \, {\rm s}^{-1}$), qui correspond à des vitesses d'impact plus élevées, non accessibles avec MICA. La simulation de cet essai avec Hésione a été faite en imposant à la surface du matériau une loi de pression équivalente à celle générée par le laser [5]. On constate



Figure 2. Comparaison expérience/calcul. Partie haute : tomographie. Partie basse : simulation. Le projectile est en blanc, le graphite en gris et le vide en noir. Le projectile arrive de la gauche. La flèche indique le mouvement de matière.



que le résultat est très sensible aux coefficients de Weibull (**figure 3**), ce qui permet donc de mieux les ajuster.

Conclusion

Nous avons montré l'existence d'un phénomène de piégeage du projectile lors d'un impact à 4 km/s d'une bille d'acier sur du graphite. Nous avons également mis en évidence que ce phénomène est possible à simuler avec un modèle de rupture fragile. Enfin, nous avons montré l'intérêt complémentaire des essais laser pour l'ajustement des paramètres associés.

Références

[1] D. NUMATA et al., "HVI tests on CFRP laminates at low temperature", Int. J. Impact Eng., 35, p. 1695-1701 (2008).

[2] G. SEISSON *et al.*, "Dynamic cratering of graphite: Experimental results and simulations", *Int. J. Impact Eng.*, **63**, p. 18-28 (2014).

[3] Y. TANABE *et al.*, "Crater formation of carbon materials by impact of a high velocity sphere", *Carbon*, 33, p. 1547-1552 (1995).

[4] D. HÉBERT *et al.*, "Plate impact experiments and simulation on porous graphite", *APS-SCCM Conf. Proc.*, Seattle, July 2013.

[5] G. SEISSON *et al.*, "Modeling of laser-driven shocks into porous graphite", *APS-SCCM Conf. Proc.*, Seattle, July 2013.

Essai d'adhérence d'assemblages de composites à l'aide de rampes de compression dynamique

E. BUZAUD - P.-Y. CHANAL / CEA – Gramat

E. GAY - L. BERTHE / Laboratoire procédés et ingénierie en mécanique et matériaux (CNRS), Arts et Métiers ParisTech, Paris M. BOUSTIE / Département de physique et de mécanique des matériaux, Institut Pprime (CNRS), ENSMA, Université de Poitiers

M. ARRIGONI / Laboratoire brestois de mécanique et des systèmes (LBMS), EA 4325, ENSTA-Bretagne, Brest

La tenue des composites de type carbone/époxy et de leurs assemblages collés suscite un intérêt croissant dans le paysage industriel actuel, particulièrement dans le secteur aéronautique. L'adhérence est l'un des paramètres prépondérants de tenue aux sollicitations mécaniques, et détermine la durée de vie de la structure. Les techniques non destructives conventionnelles ne sont pas satisfaisantes pour mesurer la résistance des assemblages collés et détecter les joints faibles. En revanche, la calibration maîtrisée d'une rampe de compression dynamique à l'aide de la machine GEPI permet d'induire un endommagement plus ou moins prononcé dans le joint de colle et de caractériser ainsi les performances du procédé de collage.

Étude expérimentale du comportement dynamique de joints collés

Un assemblage collé de composites a été soumis à des essais de décollement grâce au moyen expérimental GEPI (Générateur électrique de pression intense). Ce dernier repose sur l'utilisation de profils temporels spécifiques du courant électrique pour générer des rampes de pression dans les matériaux. Le principe consiste à faire passer une forte impulsion de courant entre deux électrodes, générant ainsi un champ magnétique intense. Leur association conduit à l'application de forces volumiques de Laplace au sein des électrodes (**figure 1a**). La décharge contrôlée du courant permet de créer une rampe de compression s'étalant sur environ 550 ns **[1**].

Les assemblages testés sont représentatifs d'éléments de structures utilisés dans le domaine aéronautique: ils sont composés de deux échantillons composites plans de 1,35 mm d'épaisseur, séparés par une couche de colle d'une épaisseur



Figure 1. (a): Schéma en coupe de la partie terminale du GEPI illustrant le principe utilisé pour la génération du chargement dynamique – (b) : Diagramme de marche de l'essai d'adhérence.



Figure 2. Analyse *post mortem* en coupe par microscopie optique d'un assemblage collé: cas de décohésion de l'adhésif EA9394 (a) et cas de résistance du joint avec l'adhésif FM73 (b). (c): signaux de vitesse enregistrés sur la surface libre des deux empilements collés.

comprise entre 200 et 500 µm. Chaque échantillon composite est constitué d'un empilement de huit plis unidirectionnels de fibres de carbone (G40-800-24 K) renforcés par une résine époxy Cytec[®]. Deux types de colle ont été testés pour le joint : une colle époxy de type Hysol[®] EA9393 et une colle époxy/ cyanamid de type Cytec[®] FM73 [2].

Dans les essais dits « d'adhésion », l'impulsion de compression transmise à l'empilement se propage jusqu'à la face arrière, libre de contrainte, où elle se réfléchit. Le croisement d'ondes de détente au cœur de l'échantillon active le processus de décollement (**figure 1b**). Une mesure de vitesse est réalisée au niveau de la face libre de l'empilement, tandis qu'une mesure témoin est effectuée sur l'électrode opposée (**figure 1a**) **[1]**. La technique de chargement électrique utilisée par GEPI permet d'éviter que l'échantillon ne subisse d'autres agressions liées au montage expérimental, comme c'est le cas pour les techniques d'impact classiques.

La récupération de l'échantillon pour une observation *post mortem* est alors possible, dans l'état où il se trouve à l'issue du chargement calibré appliqué dans le test d'adhésion.

Résultats et interprétation

Pour un chargement identique, l'empilement utilisant la colle FM73 reste intègre (**figure 2b**), tandis que celui utilisant la colle EA9393 subit une double décohésion de part et d'autre du joint de colle (**figure 2a**). Ce résultat est cohérent avec celui des essais de pelage quasi statiques réalisés par ailleurs [3].

Cette différence de réponse peut s'analyser dans le profil temporel de la vitesse mesurée en surface libre de l'empilement (**figure 2c**): au cours du premier pic de vitesse et jusqu'au temps 1,8 µs, les deux empilements répondent de façon similaire, en amplitude et en temps. Le léger écart constaté résulte essentiellement de la différence d'épaisseur du joint de colle. À partir de cet instant, les réponses des deux empilements divergent progressivement : dans l'un, la période des oscillations du profil de vitesse correspond à deux fois le temps de transit de l'onde de compression dans l'empilement, tandis que dans l'autre, cette période correspond à deux fois le temps de transit dans une épaisseur de huit plis, indiquant ainsi l'amorce d'une décohésion à l'interface joint de colle-composite.

La modélisation de l'essai utilisant la colle FM73 est conduite sous l'hypothèse d'un comportement élastique homogène de chacune des trois couches de l'empilement. Elle montre que cet empilement a résisté à une contrainte de traction de 300 MPa environ, valeur proche du seuil de rupture dynamique du composite, déterminé par des essais spécifiques sur des échantillons de composite à l'aide de la technique d'écaillage développée sur le moyen GEPI [4]. La capacité adhésive de ce joint collé est donc optimale.

Conclusion

La possibilité d'évaluer la résistance d'un joint collé à une agression mécanique dynamique calibrée à l'aide d'un générateur à haute puissance pulsée a été démontrée. Ce résultat ouvre la porte au développement d'un nouveau procédé industriel de contrôle non destructif de joints collés, capable d'isoler des défauts de fabrication jusque-là indétectables.

Références

[1] P. L. HEREIL, F. LASSALE, G. AVRILLAUD, ""GEPI: An ICE Generator for Dynamic Material Characterization and Hypervelocity Impact", *Shock Compression of Condensed Matter, AIP Conf. Proc.*, p. 1209-1212 (2003).

[2] E. GAY, Comportement de composites sous choc induit par laser, Thèse de doctorat des Arts et Métiers ParisTech, 2011.

[3] E. GAY, L. BERTHE, E. BUZAUD, M. BOUSTIE, M. ARRIGONI, "Shock adhesion test for composite bonded assembly using a high pulsed power generator", *J. Appl. Phys.*, **114**, 013502 (2013); doi: 10.1063/1.4811696.

[4] B. ERZAR, E. BUZAUD, "Shockless spalling damage of alumina ceramic", *Eur. Phys. J. – ST*, 206, p. 71-77 (2012).

Une nouvelle méthode de contact-glissement pour les schémas lagrangiens en énergie totale

E. LABOURASSE - S. DEL PINO / CEA – DAM Île-de-France

G. CLAIR / Eurobios, Gentilly

B. DESPRÉS / Laboratoire J.-L. Lions, Université Pierre et Marie Curie, Paris

En hydrodynamique, la simulation du contact entre deux matériaux soulève des problèmes de modélisation et d'analyse numérique. Pendant la phase de contact, la vitesse normale est continue de part et d'autre de l'interface, mais pas nécessairement la vitesse tangentielle. Des méthodes numériques dédiées à ce problème ont été conçues depuis les années 1960. Récemment, une nouvelle classe de schémas pour l'hydrodynamique lagrangienne a été développée au CEA. Ces schémas sont dits co-localisés ou centrés car toutes les variables principales de l'écoulement (densité, vitesse, énergie) sont définies au centre de masse des mailles du maillage. Nous proposons une méthode numérique pour prendre en compte le contact-glissement avec ces nouveaux schémas.

Schémas co-localisés (ou centrés) pour l'hydrodynamique lagrangienne

Le principe de l'hydrodynamique lagrangienne est de suivre la matière dans son mouvement. Pratiquement, les équations d'Euler ou de l'élastoplasticité sont discrétisées sur un maillage qui se déplace à la vitesse du fluide. De nouveaux schémas dédiés à la résolution de ces équations ont été développés au CEA [1,2]. Ils s'appuient sur un solveur de Riemann multidimensionnel qui permet, entre autres, d'assurer de manière discrète le premier (conservation de l'énergie) et le second principe (croissance de l'entropie) de la thermodynamique. Ce solveur calcule des variables intermédiaires aux sommets du maillage à partir des variables principales. Ces variables (tenseur des contraintes et vitesse) permettent de calculer les flux d'énergie et de quantité de mouvement, et de déplacer le maillage.

Méthode numérique pour le contactglissement

Tel quel, ce schéma prédit une unique vitesse par sommet du maillage, ce qui interdit la discontinuité des vitesses tangentielles et par conséquent la modélisation du glissement. Nous devons donc adapter la méthode à des maillages mobiles l'un par rapport à l'autre comme illustré par la **figure 1**. Plutôt que de relaxer la continuité de la vitesse, le



Figure 1. Le maillage D1 (bleu – correspondant au matériau M1) glisse sur le maillage D2 (vert – correspondant au matériau M2). L'interface discrète I1 induite par le maillage D1, ne coïncide pas avec l'interface discrète I2 induite par le maillage D2. Pourtant, elles sont l'image de la même interface physique entre les matériaux M1 et M2.



Figure 2. Problème de Caramana: un gaz léger à haute pression (en bas à droite) se détend dans un gaz léger à basse pression (en bas à gauche) et un fluide lourd haute pression (en haut). La carte de couleur correspond à la pression. La détente est rapide dans le gaz léger à basse pression, ce qui se traduit par de grandes mailles, en vis-à-vis avec de petites mailles dans le fluide lourd basse pression.

principe de notre méthode consiste à considérer autant de problèmes distincts que de matériaux. Dans le cas représenté sur la **figure 1**, les maillages D1 (correspondant au matériau M1) et D2 (correspondant au matériau M2) glissent l'un sur l'autre. L'approche discrète implique que les interfaces (dans l'exemple 11 et 12) ne sont pas confondues, alors qu'elles sont l'image d'une unique interface physique entre les matériaux (M1 et M2). Il est donc nécessaire de calculer, de manière consistante et conservative, les vitesses et les flux aux sommets des interfaces 11 et 12, en assurant la continuité de la composante normale de la vitesse.

Résolution numérique du problème contraint

Pour ce faire, le problème de Riemann décrit plus haut est reformulé sous la forme d'un problème de minimisation. Une fonctionnelle est minimisée sur les domaines associés aux différents matériaux en présence. Sur les lignes de contact entre matériaux, une contrainte est ajoutée [3,4]. Celle-ci impose la continuité de la composante normale de la vitesse le long des interfaces. La résolution de ce problème contraint est décrite dans [4,5]. Le principe est de lier la composante normale de la vitesse de chacun des sommets de chaque interface (dans l'exemple I1 ou I2) à celles de ses plus proches voisins sur l'interface en visà-vis (I2 ou I1). De proche en proche, toutes les vitesses des sommets des interfaces sont couplées. Cela nécessite la résolution d'un système linéaire de taille proportionnelle au nombre de degrés de libertés (donc de sommets) sur les interfaces. Ce système linéaire est creux, car les interactions directes entre les sommets des interfaces sont locales. La force exercée par un matériau sur l'autre se déduit de la résolution de ce problème. Les flux numériques calculés à partir de cette force assurent la conservation discrète de la quantité de mouvement et de l'énergie totale. Caramana [6] a proposé un test numérique permettant d'évaluer

l'efficacité des méthodes de contact-glissement. Le résultat numérique présenté sur la **figure 2** a été obtenu avec notre méthode pour ce test, et il confirme son potentiel.

Conclusion

Nous avons proposé et implémenté un nouvel algorithme conservatif pour prendre en compte le contact-glissement entre plusieurs matériaux. La résolution numérique des équations a été reformulée sous la forme d'un problème de minimisation sous contrainte pour assurer la continuité de la composante normale de la vitesse à l'interface entre les matériaux. Cette procédure est générale, et pourra s'étendre à la modélisation d'autres contraintes associées aux interfaces.

Références

[1] B. DESPRÉS, C. MAZERAN, "Lagrangian Gas Dynamics in Two Dimensions and Lagrangian systems", *Arch. Rational Mech. Anal.*, 178, p. 327–372 (2005).

[2] P.-H. MAIRE, R. ABGRALL, J. BREIL, J. OVADIA, "A Cell-Centered Lagrangian Scheme for Two-Dimensional Compressible Flow Problems", *SIAM J. Sci. Comput.*, **29**, p. 1781–1824 (2007).

[3] G. CLAIR, B. DESPRES, E. LABOURASSE, "A new method to introduce constraints in cell-centered Lagrangian schemes", *Comput. Method. Appl. M.*, 261-262, p. 56-65 (2013).

[4] S. BERTOLUZZA, S. DEL PINO, E. LABOURASSE, "A conservative slide line method for cell-centered semi-lagrangian and ALE schemes in 2D", soumis à *Math. Modell. Num. An.*

[5] G. CLAIR, B. DESPRÉS, E. LABOURASSE, "A one-mesh method for the cell-centered discretization of sliding", *Comput. Method. Appl. M.*, 269, p. 315-333 (2014).

[6] E.J. CARAMANA, "The implementation of slide lines as a combined force and velocity boundary condition", *J. Comput. Phys.*, **228**, p. 3911-3916 (2009).

Un multi-grille parallèle pour Maxwell harmonique

J. PESQUÉ - D. GOUDIN / CEA – Cesta

M. CHANAUD - L. GIRAUD - J. ROMAN / INRIA Bordeaux-SudOuest

La méthode multi-grille (MG) de résolution des systèmes linéaires a récemment retrouvé un très net regain d'intérêt par ses capacités à traiter de problèmes de très grande taille avec une efficacité parallèle inégalée. Réservée dans un premier temps aux opérateurs elliptiques, ses qualités ont poussé les chercheurs à étendre son domaine d'application. L'article décrit son adaptation à l'opérateur de Maxwell harmonique pour un calcul de Surface équivalente radar (SER). Grâce aux choix retenus, une convergence satisfaisante a été obtenue ainsi que de remarquables performances sur l'aspect parallélisme.

a méthode MG s'est imposée ces dernières années comme la méthode de référence pour résoudre les systèmes linéaires provenant de la discrétisation d'opérateurs elliptiques, en particulier grâce à son temps de calcul linéaire par rapport au nombre d'inconnues et à une extensibilité « parfaite » : si on dispose de p fois plus de processeurs, on peut traiter un système linéaire p fois plus gros dans le même temps calcul. Ces capacités se sont avérées rester valables pour des très grands nombres d'inconnues et de coeurs de calcul (plusieurs centaines de milliers de coeurs [1]). Par ailleurs, elle est très économe en mémoire : c'est un atout décisif pour les futures machines exaflopiques. Nous présentons ici les options retenues pour conserver au mieux ces qualités sur les matrices résultant de la discrétisation de Maxwell harmonique et ainsi que les performances obtenues.

Mise en oeuvre

On traite ici des systèmes linéaires résultant de la discrétisation par élément fini de Nédelec d'ordre 1 d'un problème de Maxwell harmonique dans le volume d'un objet. Les difficultés de ce type de matrices pour la méthode MG sont nombreuses. Après une étude préliminaire sur l'opérateur de Helmholtz, les choix suivants ont été retenus:

▶ Un *MG géométrique (MGG)*. En effet, le MG algébrique ne nous est pas apparu assez mûr sur ce type d'opérateur (les coefficients sont des nombres complexes). Un autre argument plaide pour un MG géométrique : même si la géométrie peut être représentée correctement par un maillage de taille raisonnable, la nécessité d'avoir au moins 10 mailles par longueur d'onde, impose un très grand nombre d'inconnues pour les calculs à hautes fréquences. Ainsi, ce *MGG* choisi s'appuie sur une hiérarchie des maillages

Processeurs	Factorisation Temps en s	V-cycles (10) (en s)	Déraffinage %	Prolongation %	Lissage %
256	118	629	3,6	13,5	82,6
512	125	345	3,6	13,5	82,3
1024	152	213	3,6	13,4	81,9

Tableau 1. Extensibilité des différentes phases du MG sur un maillage fin de 339,5 millions d'inconnues (maillage grossier 21 millions, MG à 3 niveaux, 10 cycles pour la convergence). automatiquement générés par découpage des éléments initiaux;

► L'opérateur de Prolongation repose sur les fonctions de formes des éléments finis choisis. La Restriction canonique est retenue pour faciliter la parallélisation;

▶ Le Lisseur retenu sur les grilles fines est de type Jacobi: il peut en effet se jouer sans assembler la matrice globale et est donc particulièrement économe en mémoire;

Sur cet opérateur, les matrices deviennent de plus en plus non définies positives quand on descend sur les grilles grossières: nous avons donc choisi de faire peu de niveaux de grilles et d'utiliser un solveur direct PaStiX [2] sur la plus grossière.

Précisions et éclaircissements peuvent être trouvés dans [3,4].

Convergence et performances parallèles

Dans des conditions favorables (nombres d'onde raisonnable et/ou présence de pertes diélectrique et/ou nombre suffisant de mailles par longueur d'onde), le MG ainsi défini converge jusqu'à des précisions suffisantes. Dans le cas contraire, on constate que ses premières itérations restent toujours rapidement convergentes; cela conduit alors à l'utiliser comme un préconditionneur très efficace [4].

Le **tableau 1** présente les performances de ce MG sur un problème de 339 millions d'inconnues pour un nombre de processeurs variant entre 256 et 1 024. La factorisation sur la grille grossière présente une extensibilité insuffisante, mais cela n'a pas d'importance car elle n'est réalisée qu'une seule fois en dehors de la boucle sur les cycles (itérations) du MG et de celle sur les angles d'éclairements de l'onde radar. Par contre, l'extensibilité du MG est beaucoup plus satisfaisante. Les trois colonnes de droite montrent que ses composantes les plus importantes ont un comportement similaire vis-à-vis de cet objectif : les autres composantes (entre autres, les résolutions sur grille grossière) prennent un temps négligeable (< 1%.).

Enfin, un calcul sur un maillage fin de 1,3 milliard d'inconnues a pu être mené en 1700 s sur 1024 processeurs. **La figure 1** montre le type de géométrie étudiée.

Conclusion

Les options retenues dans ce MG ont permis d'allier une convergence satisfaisante à un confort d'utilisation: le maillage fourni par l'utilisateur (décrivant la géométrie) est automatiquement raffiné pour respecter la condition liée à l'éclairement. Pour la première fois, un système linéaire de ce type (variable complexe) de plus de 1 milliard d'inconnues a été résolu, dans un temps raisonnable, sur la machine TERA 100. Le comportement sur un problème de Helmholtz est parfaitement identique. L'extension à d'autres opérateurs est à l'étude.



Figure 1. Exemple de géométries étudiées.

Références

[1] A. BAKER et al., "Multigrid smoothers for ultraparallel computing", SIAM, J. Sci. Comput., 33, p. 2864-2887 (2011).

[2] P. HÉNON *et al.*, "PaStiX: A high performance parallel direct solver for sparse symmetric definite system", *Parallel Comput.*, **28**, p. 301-321 (2002).

[3] M. BOULET et al., «Résolution des systèmes linéaires sur calculateurs pétaflopiques», chocs, 41, p. 68-80 (2012).

[4] M. CHANAUD, L. GIRAUD, D. GOUDIN, J. PESQUÉ. J. ROMAN, "A Parallel Full Geometric Multigrid Solver for the Time Harmonic Maxwell Problem", *SIAM, J. Sci. Comput.*, **36**(2), p. C119-C138 (2014) – <u>doi</u>: 10.1137/130909512.

PRIX LOUIS AND EDITH ZERNOW

Jean-Luc Zinszner, Benjamin Erzar et Éric Buzaud du CEA – Gramat ont obtenu le prix Louis and Edith Zernow pour leur article "Experimental and Numerical Analyses of the Fragmentation of Alumina", présenté au 27° symposium international de balistique (ISB, 22 au 26 avril à Fribourg, Allemagne). Ce prix, décerné par l'association américaine NDIA (National Defense Industrial Association), récompense à chaque édition de ce colloque une avancée fondamentale de la science balistique.

PRIX HEINO TOOMING

Thierry Farges et Louis-Jonardan Gallin, chercheurs au centre DAM Île-de-France ont reçu, en juin, le prix Heino Tooming pour leurs travaux de recherche sur l'étude des phénomènes météorologiques violents. Ces travaux ont été menés dans le cadre du projet européen HyMeX, destiné à mieux comprendre le cycle hydrologique du bassin méditerranéen lors d'épisodes orageux intenses.

PRIX DE THÈSE DU CONSEIL GÉNÉRAL DU VAL-DE-MARNE

Daniel Chauveheid (CEA – DAM Île-de-France) a reçu le prix du Conseil général du Val-de-Marne pour sa thèse de l'École normale supérieure de Cachan en mécanique des fluides intitulée «Écoulements multiphysiques et multi-matériau, solveur volumes finis eulérien co-localisé avec captures d'interfaces, analyses et simulation».

CODE DE CONDUITE EUROPÉENS DES DATA CENTRES

Le centre DAM Île-de-France est un des trois lauréats du prix annuel du Code de conduite européen des Data centres (CoC), catégorie utilisateurs / centre de calcul existant. Le supercalculateur Tera 100 a obtenu cette distinction en mettant en avant une approche combinée: réduction de la consommation électrique des équipements de calcul, adoption de dispositifs passifs et plus économes de filtrage du courant, refroidissement par eau des baies de calcul au lieu d'air, mise en place de mesures et de surveillance automatisées de toute l'infrastructure. Le prix a été remis le 29 mai à l'occasion de la conférence *Data Centres Europe 201* à Nice.

FAITS MARQUANTS EN 2013

INAUGURATION DE L'INSTITUT OPTIQUE D'AQUITAINE

L'**Institut optique d'Aquitaine** (IOA) a été inauguré le 14 octobre sur le campus de l'université de Bordeaux, en présence notamment du président du Conseil régional, porteur financier du projet, du préfet de Gironde et d'Aquitaine, des présidents de l'université Bordeaux 1 et de l'Institut d'Optique Graduate School, du délégué régional du CNRS et du directeur du Cesta qui est également président du pôle de compétitivité Route des lasers.

Ce bâtiment de près de 18000 m², qui abritera différents acteurs du monde de l'éducation, de la recherche et du transfert de technologie, marque une nouvelle étape dans la volonté de développer dans la région un écosystème de la filière optique et laser.

LE CCRT CÉLÈBRE SES 10 ANS

Le **Centre de calcul recherche et technologie** (CCRT) a célébré le 5 décembre 2013, à Bruyères-le-Châtel, dix années de partenariat entre le CEA et l'industrie. Cet événement a été organisé au nom de l'Administrateur général du CEA sous le haut patronage du ministère du Redressement productif. Il a rassemblé plus de 200 personnes (partenaires, industriels, élus...).

EXPÉRIENCES ACADÉMIQUES AU NIF

Dans le cadre du premier appel à projet émis en 2010 par le *Lawrence Livermore National Laboratory* pour des expériences académiques sur le *National Ignition Facility* (NIF), la proposition portée par le CEA – DAM a été sélectionnée pour la première campagne d'expériences. Cette campagne est consacrée à l'étude des instabilités de Rayleigh Taylor au front d'ablation. Elle a été conçue et dimensionnée par les équipes du centre DAM Île-de-France avec le support du CEA – Valduc. Après un tir de qualification du dispositif expérimental réalisé le 21 mars 2013, le premier tir de physique a été mené à bien le 9 octobre. L'ensemble des données attendues a été acquis et leur interprétation est en cours.

OUTSTANDING PAPER À NSREC 2012

Philippe Paillet, Marc Gaillardin et Claude Marcandella du centre DAM Île-de-France ont reçu en avril 2013 le prix du meilleur papier à la conférence NSREC 2012 (Nuclear and Space Radiation Effects Conference) qui s'est déroulée à Miami en juillet 2012. Ce prix récompense une collaboration avec l'Institut supérieur de l'aéronautique et de l'espace (ISAE) sur la sensibilité des composants optoélectroniques.

NOMINATIONS

Jean-Pierre Giannini, directeur du Cesta, a été élu président du pôle de compétitivité Route des lasers le 27 juin. Il assure la gouvernance et l'animation du pôle dont les objectifs sont de structurer la recherche scientifique autour des lasers, contribuer à la formation, accompagner l'innovation dans les technologies lasers et favoriser le développement des PME-PMI-ETI de la filière laser et photonique en Aquitaine.

Luc Bergé (CEA – DAM Île-de-France) a été élu en juin pour une durée de deux ans président de la division *Quantum Electronics and Optics* de la Société européenne de physique.

LANCEMENT DU PROJET LAVDISIER

Le 22 octobre, le président du Conseil régional du Centre et l'Administrateur général du CEA, ont signé, au CEA – Le Ripault, la convention cadre du **projet Lavoisier**. L'objectif de ce projet, sur la période 2013-2020, est de rassembler les conditions de la croissance d'une économie des énergies bas-carbone en renforçant les collaborations académiques et industrielles, couvrant l'ensemble du spectre s'étendant de la recherche au transfert de technologie. Le projet Lavoisier disposera, à terme, de quatre pôles: transfert de technologie, sécurité des matériaux et systèmes, recherche, ingénierie et formation.

PREMIÈRES JOURNÉES MATÉRIAUX NUMÉRIQUES

.....

Les premières journées dédiées aux matériaux numériques ont été organisées par le centre du Ripault du 12 au 14 février 2013 à Loches (Indre-et-Loire). Elles ont rassemblé près de 80 personnes concernées par la représentation numérique 3D de la micro-structure des matériaux, dans le but de comprendre et de prévoir leur comportement.

COLLOQUE LOUIS NÉEL

Le Ripault et l'université François-Rabelais de Tours ont organisé, pour la première fois, le colloque Louis Néel à Tours du 20 au 22 mars. Cet événement permet de suivre l'évolution des recherches en micro-électronique et plus précisément les propriétés des couches minces et des nanostructures magnétiques.

RENCONTRES SCIENTIFIQUES À SAINT MALO

La 4^e conférence internationale sur les hautes densités d'énergie (ICHED) et le 7th Workshop International Warm Dense Matter (WDM) se sont déroulés fin juin, en parallèle, à Saint-Malo. Ces événements ont été organisés par le CEA – DAM Île-de-France, avec l'Observatoire de Paris (LUTh), l'école polytechnique (Luli) et le Celia. L'ICHED a été l'occasion de faire le point sur les campagnes sur le National Ignition Facility (NIF), l'astrophysique de laboratoire et les applications des lasers à très haute intensité. WDM a permis de mesurer l'impact des grandes installations telles le NIF et les machines massivement parallèles sur la production, le diagnostic et la simulation de ce régime complexe de la matière.

COLLOQUE «PROPRIÉTÉS MÉCANIQUES DE FILMS & REVÊTEMENTS FONCTIONNELS»

Le 19 septembre 2013, Le CEA – Le Ripault a organisé un colloque au Collège de France avec la collaboration du Laboratoire de chimie de la matière condensée de Paris (LCMCP). Ce colloque national, premier du genre, a réuni 80 participants sur la thématique des propriétés mécaniques des films et des revêtements fonctionnels. L'objectif principal de cette rencontre était d'engager un échange entre chimistes et physiciens - mécaniciens autour de la caractérisation délicate des revêtements, et en particulier des couches minces.

LIVRES PARUS EN 2013

RADIOPROTECTION



Avec la contribution, en 2013, de **Philippe Guétat** et **Pierre Le Goff** du CEA – Valduc.

Éditions EDP Revue de la société française de radioprotection

Radioprotection est depuis 40 ans le support apprécié de tous les intervenants de la radioprotection. Ce journal publie des articles concernant tous les aspects de la protection, des rayonnements ionisants au non ionisants, de la théorie à l'application pratique pour la protection de l'Homme et de l'environnement.



FACE AUX CRISES, COURAGE, CHANGEONS ! CONFIANCE ET SOLIDARITÉ: LES CONDITIONS DE RÉUSSITE EN GESTION DE CRISE

Éditeur : La documentation française

Cet ouvrage paru en septembre 2013 analyse les résultats de très nombreux entretiens réalisés en France, en Europe, en Chine, aux États-Unis réalisés en 2012 sur les conditions d'efficacité de la gestion de crise. À noter la participation de **Rémi Bossu** du Centre sismologique euro-méditerranéen (CSEM/CEA) basé à Bruyères-le-Châtel qui s'est plus particulièrement intéressé à l'utilisation des réseaux sociaux et des nouvelles technologies pendant une crise.

HABILITATIONS À DIRIGER LES RECHERCHES EN 2013

GÉRARD BAUDIN

CEA – Gramat

Physique des explosifs: de l'amorçage aux effets des explosifs condensés.

FRÉDÉRIC SABARY

CEA — Le Ripault

Dépôts en phase vapeur de couches minces à propriétés optiques.

NICOLAS SAUREL

CEA – Valduc

Conception et réalisation de systèmes de contrôle non destructif par mesures du rayonnement nucléaire et métrologie associée pour la quantification des radionucléides contaminant les déchets et les procédés de l'industrie nucléaire.

ABINIT 2013

Le CEA – DAM Île-de-France a organisé à Dinard, du 15 au 19 avril, le workshop des développeurs du code de structure électronique Abinit. Cet événement, organisé tous les deux ans, a rassemblé une cinquantaine de personnes. L'accent a été mis sur les actions à mener pour que le code soit plus convivial pour de nouveaux utilisateurs. Le prochain workshop se tiendra à Liège au printemps 2015.

SÉMINAIRE « L'ANALYSE, DU NANO AU MACRO... REPRÉSENTATIVITÉ DE LA MESURE ET SUPPORT À LA MODÉLISATION »

Le séminaire «L'analyse, du nano au macro... Représentativité de la mesure et support à la modélisation », organisé par la Commission d'établissement des méthodes d'analyse du centre de Marcoule en partenariat avec le centre du Ripault, et avec le soutien de la Région Centre, s'est déroulé au lycée Descartes de Tours du 14 au 16 octobre. Il a réuni 75 participants et donné lieu à de nombreuses communications dans trois domaines analytiques: élémentaire et isotopique, moléculaire et organique, morphologique et structurale. Cette manifestation donnera lieu à un numéro spécial de la revue Spectra Analyse en 2014.

Retour sommaire

CHOCS AVANCÉES 2013 / AVANCÉES SCIENTIFIQUES ET TECHNIQUES DE LA DIRECTION DES APPLICATIONS MILITAIRES 499

