

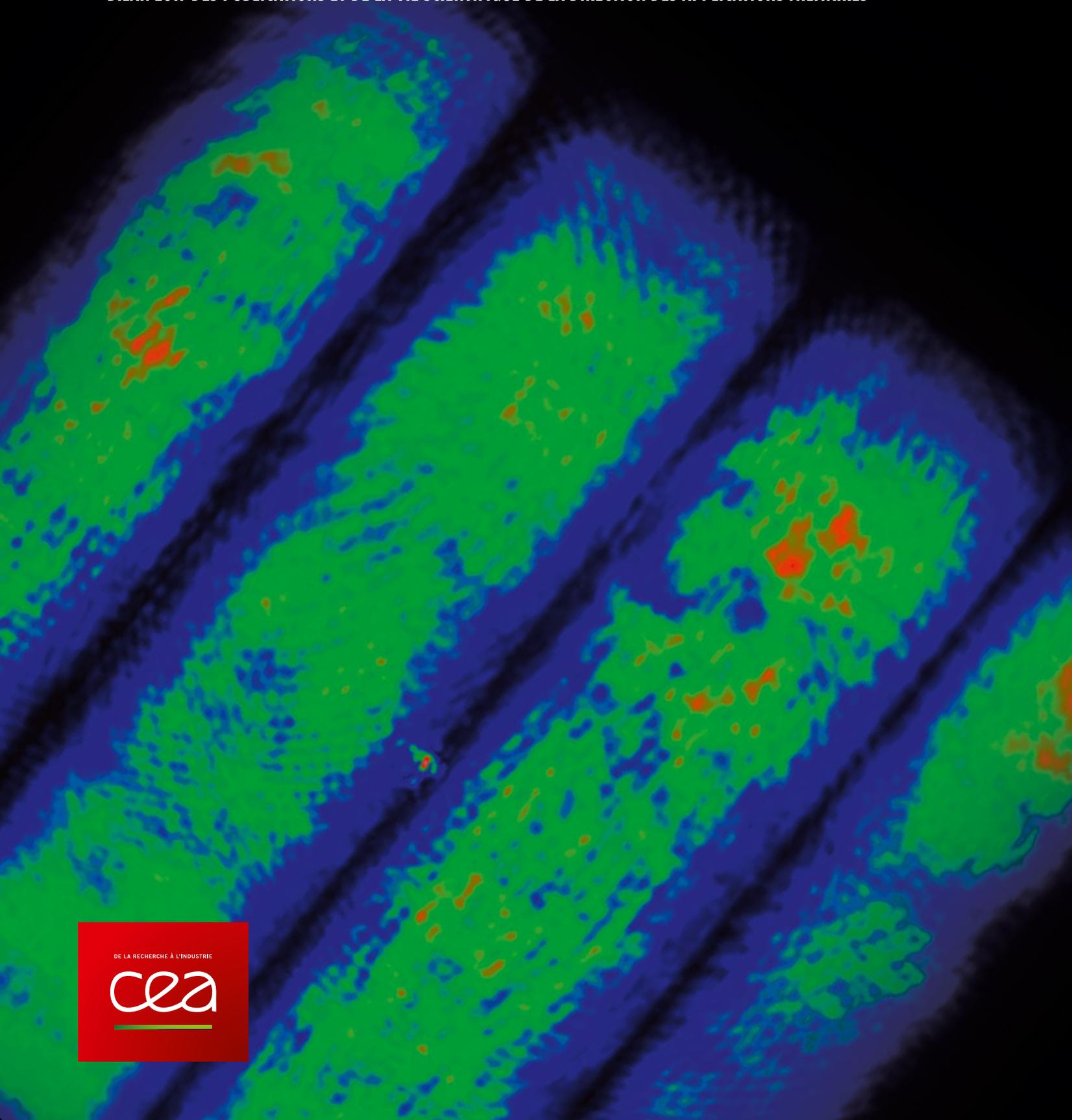
chocs

AVANCÉES

N° 12

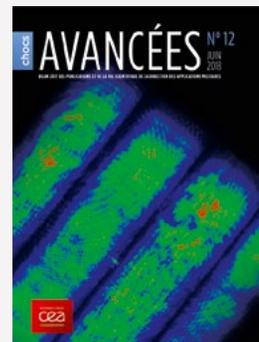
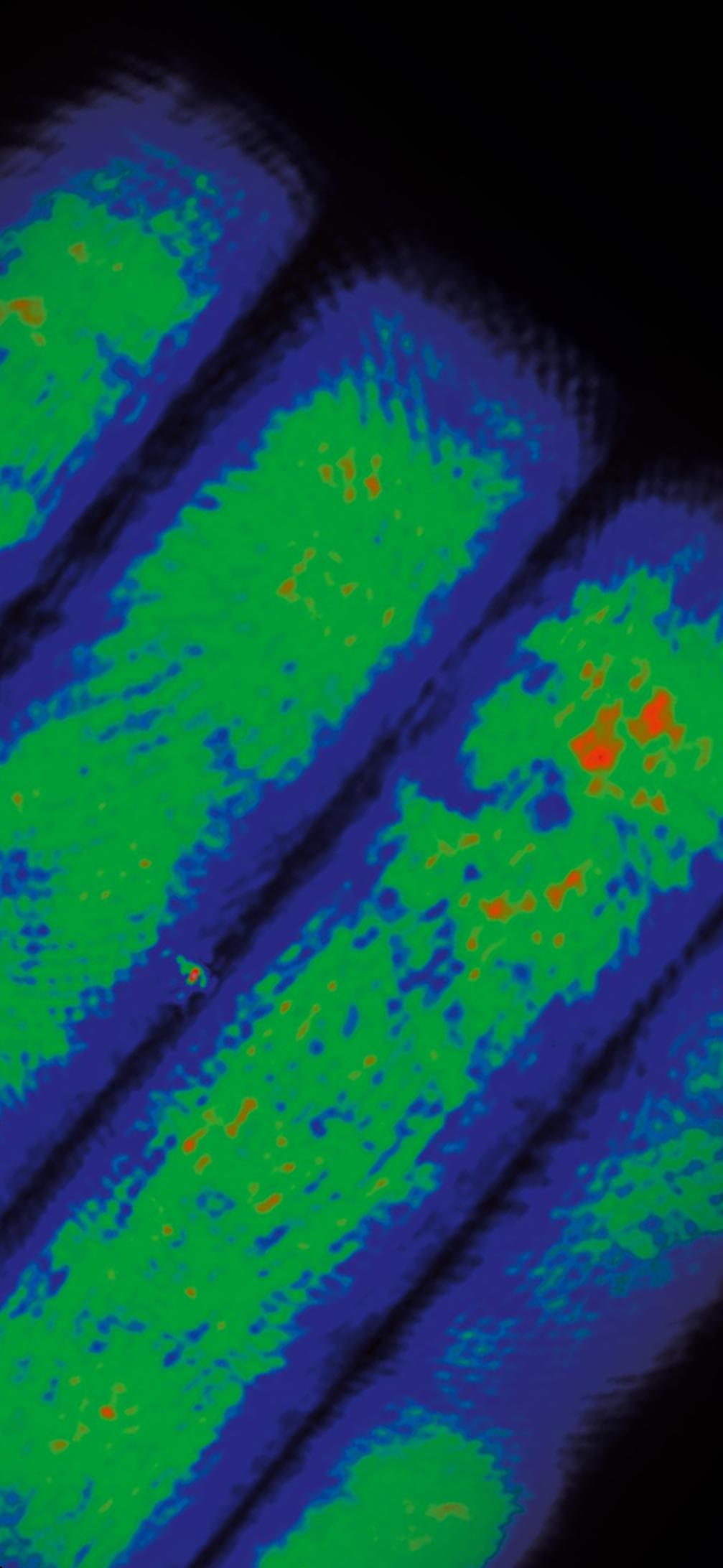
JUIN
2018

BILAN 2017 DES PUBLICATIONS ET DE LA VIE SCIENTIFIQUE DE LA DIRECTION DES APPLICATIONS MILITAIRES



DE LA RECHERCHE À L'INDUSTRIE

cea



CHOCs AVANCÉES

N° 12 - juin 2018

Commissariat à l'énergie atomique
et aux énergies alternatives

Revue chocs avancées n° 12,

Bilan 2017 des publications et de la vie scientifique
de la Direction des applications militaires.

Image de couverture : Profil spatial expérimental
du laser PETAL – © CEA - DAM

Directeur de la publication : Laurence BONNET.

Coordinateur scientifique : Jean-Marc CHEVALIER.

Comité scientifique : Daniel BOUCHE, Serge BOUQUET,
Gilles BOURGÈS, Pierre BRUGUIÈRE, Remo CHIAPPINI,
Jean-François CLOUET, Patrick DAVID, Francis HARDOUIN,
Hervé JOURDREN, Denis JURASZEK, Stéphane LOUBIÈRE,
Pierre-Henri MAIRE, Christophe MOULIN,
Philippe SIMONETTI, Olivier VACUS.

Rédacteur en chef : Jean-Marc LABORIE.

Création et réalisation : EFIL / www.efil.fr.

Impression : Gibert & Clarey.

Diffusion et abonnement : Régis Vizet.

CEA/DAM

Institut supérieur des études nucléaires
de défense (ISENDe)

Bruyères-le-Châtel, F-91297 Arpajon Cedex

Tél. : 33 (0)1 69 26 76 98

Courriel : chocs@cea.fr

Brochure imprimée sur papier écogéré
ISSN 1961-7399

*La reproduction totale ou partielle des informations
et illustrations contenues dans ce numéro doit être soumise
à l'accord préalable du CEA.
Le courrier des lecteurs sera transmis aux auteurs
par le secrétariat de la revue.*



SOMMAIRE

ÉDITORIAL 02

VIE SCIENTIFIQUE 04

INTERACTION RAYONNEMENT-MATIÈRE, PHYSIQUE DES PLASMAS 10

- Non-localité de l'interaction laser-plasma** 10
D. BÉNISTI, C. ROUSSEAU, L. GREMILLET, K. GLIZE, V. DERVIEUX, S. D. BATON, L. LANCIA
- Expérience de collimation d'un jet d'électrons relativistes par le carbone vitreux** 12
X. VAISSEAU, M. TOUATI, S. HULIN, P. NICOLAÏ, R. NUTER, D. BATANI, J. BREIL, J.-L. FEUGEAS *et al.*
- Qualification d'une plateforme expérimentale d'hydrodynamique plane sur le National Ignition Facility** 14
A. CASNER, C. MAILLIET, E. LE BEL, V. T. TIKHONCHUK *et al.*
- Optimisation d'un faisceau d'électrons dans un accélérateur laser-plasma** 16
X. DAVOINE, H. EKERFELT, O. LUNDH

PHYSIQUE NUCLÉAIRE 18

- Mesures de haute précision de rendements de fission nucléaire** 18
E. PELLEREAU, J. TAIEB, A. CHATILLON, G. BÉLIER *et al.*

PHYSIQUE DE LA MATIÈRE CONDENSÉE 20

- Découverte du superhydrure FeH₅: la nouvelle chimie des hydrures sous très haute pression** 20
C. M. PÉPIN, G. GENESTE, A. DEWAELE, P. LOUBEYRE, M. MEZOUAR
- Une première dans la modélisation du plutonium à haute température** 22
B. DORADO, F. BOTTIN, J. BOUCHET

MATÉRIAUX, PHYSIQUE DU SOLIDE 24

- Simulation de l'éjection de matière sous choc par approches continue et atomistique** 24
O. DURAND, S. JAOUEN, L. SOULARD, O. HEUZÉ, L. COLOMBET

MÉCANIQUE DES FLUIDES 26

- Application du principe de moindre action pour la simulation d'écoulements multiphasiques compressibles** 26
T. VAZQUEZ-GONZALEZ, A. LLOR, C. FOCHEATO
- Étude d'un matériau composite en carbone soumis à un environnement de rentrée atmosphérique** 28
C. LEVET, J. COUZI, J. MATHIAUD, B. HELBER, J.-B. GOURIET, O. CHAZOT, G. VIGNOLES

MÉCANIQUE ET THERMIQUE 30

- Modélisation de bétons et de céramiques de blindage: complémentarité des essais à l'échelle du matériau et de la structure** 30
B. ERZAR, C. PONTIROLI, J.-L. ZINSZNER, P. FORQUIN

OPTIQUE ET OPTRONIQUE 32

- PETAL, un laser pétawatt de haute énergie: performances expérimentales et modélisation** 32
N. BLANCHOT, H. COÏC, M. SOZET, G. BÉHAR, S. CHARDAVOINE, C. DAMIENS-DUPONT, L. HILSZ, L. LAMAIGNÈRE, F. LANIESSÉ, E. LAVASTRE, J. NÉAUPORT, S. NOAILLES, C. ROUYER

INSTRUMENTATION, MÉTROLOGIE ET CONTRÔLE 34

- Développements expérimentaux pour la diffraction X sous choc** 34
F. ZUCCHINI, C. CHAUVIN, P. COMBES, S. BLAND
- Développement de nouveaux scintillateurs pour les diagnostics plasma du Laser Mégajoule** 36
A. ROUSSEAU, S. DARBON, M. HAMEL, M. TROCMÉ

COMPOSANTS ET ÉQUIPEMENTS ÉLECTRONIQUES 38

- Nouveaux capteurs d'image en environnement radiatif: compréhension des mécanismes de dégradation** 38
J.-M. BELLOIR, C. VIRMONTAIS, O. GILARD, P. PAILLET, M. RAINE, V. GOIFFON, C. DURNEZ, R. MOLINA, P. MAGNAN

SCIENCES DU CLIMAT ET DE L'ENVIRONNEMENT 40

- Inversion jointe de données régionales et télésismiques pour contraindre la source sismique** 40
A. TRILLA, J. LETORT, S. FORD, S. MYERS
- Vers une estimation en temps réel de l'amplification côtière au centre national d'alerte aux tsunamis français** 42
A. GAILLER, H. HÉBERT, F. SCHINDELÉ, D. REYMOND

CHIMIE 44

- Adsorption des isotopes de l'hydrogène dans la zéolithe NaX: données expérimentales et modélisation** 44
M. MACAUD, C. GAUVIN, J.-M. SALAZAR, S. LECTEZ, J.-P. BELLAT, G. WEBER, I. BEZVERKHYY, J.-M. SIMON
- Caractérisation des nanocontacts d'un revêtement optique du Laser Mégajoule** 46
J. AVICE, C. BOSCHER, P. BELLEVILLE, H. PIOMBINI *et al.*
- Application des fragments géométriques au calcul de la solubilité dans l'octanol** 48
D. MATHIEU
- Interaction du plutonium avec une protéine du sang, la transferrine** 50
J. AUPAIS, S. SAUGE-MERLE, D. LEMAIRE, C. BERTHOMIEU, R. W. EVANS

MATHÉMATIQUES, INFORMATIQUE SCIENTIFIQUE, LOGICIEL 52

- Taco: compilation et génération de code d'expressions tensorielles** 52
D. LUGATO, F. KJOLSTAD, S. CHOU, S. AMARASINGHE, S. KAMIL
- Composition de polynômes pour l'apprentissage statistique de fonctionnelles complexes** 54
G. PERRIN, S. MARQUE-PUCHEU, C. SOIZE, J. GARNIER
- Interaction fluide-structure sur grille cartésienne** 56
S. JAOUEN, G. DAKIN, B. DESPRÉS

2017, UNE ANNÉE EXCEPTIONNELLE POUR LA DAM

L'année 2017 a été une année exceptionnelle à plus d'un titre.

Tout d'abord, le président de la République nouvellement élu a confirmé la dissuasion comme clef de voûte de la stratégie de défense de la France. Il a engagé les programmes assurant sur le long terme la pérennité des deux composantes dont la complémentarité a été réaffirmée et leur modernisation, permettant leur adaptation à la nature des menaces et aux évolutions technologiques qui pourraient altérer leurs performances. Cela garantit la préservation de la capacité de chacun des systèmes d'armes à remplir ses missions et d'avoir des performances offrant au chef de l'État une large gamme d'options face aux menaces. Cette dynamique ouvre des perspectives dans la durée pour l'ensemble des partenaires de l'Œuvre commune, à commencer par la Direction des applications militaires (DAM) du CEA, dont les programmes à moyen et long termes ainsi que les budgets nécessaires à leur réalisation dans le calendrier décidé, ont ainsi été confirmés. Les équipes de la DAM et tous ceux et celles qui les rejoindront dans les années à venir ont devant eux des défis scientifiques et techniques majeurs et particulièrement motivants dans de nombreux domaines.

Dans ce contexte, la crédibilité scientifique et technique de la dissuasion se doit d'être assurée en permanence. Elle repose sur la capacité à réaliser les programmes en respectant le triptyque « performances, coût, délai » et sur les différentes avancées et réalisations scientifiques et techniques dont les équipes de la DAM peuvent se prévaloir et qu'elles peuvent exposer au grand jour.

La réalisation avec succès de la première expérience académique sur l'installation Laser Mégajoule-PETAL au CEA – Cesta près de Bordeaux constitue une

démonstration éclatante de la capacité de la DAM et de ses équipes à mener des projets complexes et à relever des défis techniques majeurs. Les performances du laser PETAL, tant du point de vue énergie que qualité de faisceau (voir photo de couverture) ont pu être atteintes grâce à l'ingéniosité des scientifiques de la DAM qui ont imaginé des dispositifs optiques innovants pour aller au-delà des performances atteintes jusqu'alors. PETAL, financé par la Région Nouvelle-Aquitaine, l'État et l'Europe est, couplé au Laser Mégajoule, une installation unique en Europe. Elle offrira, dans les prochaines années et au rythme décidé de 20 à 30 % du temps dédié aux expériences de physique, des opportunités fantastiques à la communauté académique et ainsi permettra des avancées majeures dans la compréhension de phénomènes complexes en astrophysique, planétologie, plasmas à haute densité d'énergie, etc.

Dans le domaine du calcul à haute performance, c'est la barrière énergétique qui a été fortement abaissée, ouvrant ainsi la voie à un coût « raisonnable » à l'exascale. Le codéveloppement, réalisé entre les équipes du CEA – DAM et celles d'Atos-Bull, d'une architecture de supercalculateurs réduisant la consommation électrique tout en augmentant d'un facteur 20 la puissance de calcul installée est une prouesse. Tous ces exploits ne sont pas très utiles si, dans le même temps, mathématiciens appliqués, numériciens, physiciens et informaticiens ne travaillaient pas ensemble à concevoir de nouvelles architectures de logiciels et de codes qui savent tirer parti de ces pétaflops désormais disponibles en routine pour chaque équipe de recherche. Gageons que les grands défis en cours sur la machine JOLIOT-CURIE (IRENE), installée en 2017 au Très grand centre de calcul (TGCC) dans le cadre de GENCI et récemment mise en service pour les physiciens, offriront

aux chercheurs une moisson de résultats qui, là aussi, conduiront à de grandes avancées dans la résolution de problèmes complexes et inaccessibles par le calcul ou l'expérience jusqu'à présent.

Ce qui caractérise toutes ces réussites, c'est la capacité à fédérer des équipes pluridisciplinaires qui œuvrent ensemble pour élaborer les solutions permettant, malgré les obstacles, de parvenir aux spécifications, même lorsqu'elles dépassent les limites couramment admises. Le meilleur opticien du monde n'est rien sans l'ingénieur en procédés qui saura concevoir le matériau et les traitements associés qui répondront, en termes de performances, au besoin, tout en garantissant la reproductibilité du processus, sa maîtrise et le respect des réglementations, notamment REACH... Un supercalculateur, sans des équipes pluridisciplinaires alliant physiciens, numériciens, experts en maillage ou en visualisation, informaticiens connaissant parfaitement les caractéristiques de leurs moyens, ne serait qu'un assemblage d'électronique, certes sophistiquée... Le meilleur théoricien a besoin de l'expérimentateur qui va être capable d'imaginer et de concevoir l'expérience permettant d'avoir accès, en minimisant les incertitudes expérimentales, à des données précises pour lui permettre de valider la modélisation qu'il a développée, l'expérimentateur lui-même ayant besoin d'experts en microtechnologies pour concrétiser ses idées de design de cibles, d'experts en électronique et en optique pour développer les dispositifs de mesure, de techniciens pour faire fonctionner l'installation...

La liste des réussites récentes, reposant sur des équipes le plus souvent pluridisciplinaires, pourrait être continuée ainsi pendant plusieurs pages. Vous trouverez dans ce numéro 12 de la revue *chocs avancées* quelques exemples de publications qui les ont matérialisées dans les revues à comité de lecture. Comme vous le constaterez en parcourant les pages de la vie scientifique, le rythme de publications reste soutenu, à plus de 400 dans les revues en 2017 et près de 110 comptes rendus de conférence publiés dans un livre ou une série. Je voudrais souligner ici l'importance des présentations en congrès qui offrent une grande visibilité aux travaux menés et permettent à nos scientifiques d'avoir instantanément l'avis des meilleurs experts mondiaux du domaine. Ils sont, comme le sont les comités d'évaluation scientifique, menés régulièrement depuis plus de 20 ans sur les activités scientifiques et techniques, l'occasion d'une prise de hauteur sur les orientations de recherche faites et d'un

enrichissement des connaissances. La DAM consacre un budget significatif à la participation aux congrès scientifiques et veille à ce que ses doctorants et post-doctorants aient l'opportunité d'y présenter leurs travaux et ainsi de développer leur notoriété dans leur communauté et leur réseau.

La DAM est profondément ancrée dans le paysage de la recherche nationale et internationale. Les créations régulières de laboratoires de recherche conventionnés (LRC) ou le renouvellement des unités mixtes de recherche existantes matérialisent les liens très forts existant avec des laboratoires académiques de pointe détenant des compétences uniques et précieuses pour le développement de connaissances fondamentales en amont de nos programmes. Ils constituent des lieux privilégiés d'échanges scientifiques, précieux pour nos chercheurs et vecteurs de ressourcements, tant intellectuel qu'humain *via* l'attractivité qu'ils exercent sur les jeunes talents. La tendance va se confirmer dans les années à venir avec la création de nouveaux LRC dans différents domaines. La vitalité des collaborations scientifiques est manifeste au travers du ratio de copublications qui est proche de 50 %. Parmi toutes les collaborations internationales, une mention particulière doit être faite pour la collaboration « Basic science » entre le CEA – DAM et le DOE/NNSA qui, depuis sa mise en place en 2002, est restée active et productive, comme ont pu le constater les participants au General meeting organisé en 2017 aux États-Unis.

En 2018, la DAM fêtera le 60^e anniversaire de sa création. À côté des manifestations festives qui marqueront cet événement, un ouvrage relatif aux défis scientifiques et techniques, que les équipes de la DAM ont relevés pour réussir les avancées nécessaires à la réalisation des programmes qui leur sont confiés, sera édité. Je vous invite à le feuilleter et à le partager avec tous ceux et toutes celles qui veulent s'engager au sein des équipes de la DAM et mettre au service de la sécurité de notre pays leurs compétences humaines et professionnelles. Ils trouveront dans cet ouvrage un aperçu des défis du futur qui devront être relevés pour pérenniser la dissuasion au niveau d'exigence et de performance requis.



➔ PRIX ET DISTINCTIONS 2017

Le CEA – DAM distingué pour sa collaboration avec le DOE

À Washington, le Directeur des applications militaires a reçu des mains du général Klotz, Administrateur de la National Nuclear Security Administration (DOE/NNSA), une médaille d'or pour saluer le CEA – DAM pour le remarquable pilotage de programmes et la réussite d'une collaboration scientifique et technique à très haut niveau sur dix années, avec la NNSA.

Prix Édouard Fabre

Le prix Édouard Fabre récompense annuellement un jeune chercheur européen pour la qualité de ses travaux dans le domaine de la physique de la fusion par confinement inertiel et de la physique de l'interaction laser-plasma. Le prix 2017 a été décerné à **Alexis CASNER** du CEA – Cesta, actuellement directeur adjoint du CELIA (UMR 5107 CNRS – CEA – Université de Bordeaux). Un autre chercheur du CELIA, le professeur Vladimir TIKHONCHUK, a reçu la prestigieuse médaille Edward Teller, délivrée par l'American Nuclear Society, pour ses travaux sur les instabilités hydrodynamiques.

Prix Enseignement et Formation

Le prix Enseignement et Formation 2017 de la Société française d'énergie nucléaire (SFEN) a été attribué *ex aequo* à Rodolphe ANTONI du CEA – Cadarache et à **Laurent BOURGOIS** du CEA – DAM Île-de-France pour leur ouvrage *Applied physics of external radiation exposure : dosimetry and radiation protection* (Springer, Paris, 2016).

Prix de l'Union européenne

Lors de la conférence Science&Technology qui s'est déroulée à Vienne (Autriche), la présentation du projet SPALAX-Nouvelle Génération a reçu le prix de l'Union européenne. Cette conférence est la vitrine des activités scientifiques autour du Traité d'interdiction complète des essais nucléaires. Ce prix récompense la conception et la mise au point par le CEA – DAM Île-de-France d'une nouvelle génération de station de mesure du xénon radioactif dans l'air qui améliorera nettement la détectabilité des rejets.

Nomination au conseil d'administration de PROCORAD

Christophe MOULIN a été nommé au conseil d'administration de PROCORAD, association pour la Promotion du contrôle de qualité des analyses de biologie médicale en radiotoxicologie. Elle a pour objectif de permettre des échanges scientifiques et techniques entre les différents partenaires (AREVA, CEA, EDF, etc.), et organise aussi des intercomparaisons afin de contrôler la qualité des résultats des analyses et de promouvoir les bonnes pratiques de laboratoire.

Distinguished paper award de la société savante ACM

La conférence OOPSLA, organisée à Vancouver par la société savante ACM (Association for Computing Machinery), a décerné un *distinguished paper award* pour l'article "The Tensor Algebra Compiler". La méthode proposée dans ces travaux, issus d'une collaboration entre **David LUGATO** du CEA – Cesta et des chercheurs du Massachusetts Institute of Technology, permet de générer automatiquement du code parallèle performant, pour diverses applications (*Deep learning*, etc.).

Best Paper Honorable Mention de la Thermal Spray Society

L'article "Effect of Suspension Plasma-Sprayed YSZ Columnar Microstructure and Bond Coat Surface Preparation on Thermal Barrier Coating Properties", publié notamment par **Benjamin BERNARD** et **Aurélié QUET** du CEA – Le Ripault, dans le cadre des études CEA réalisées en partenariat avec le groupe Safran, a obtenu le prix *Best Paper Honorable Mention* du volume 26 du *Journal of Thermal Spray Technology* par la *Thermal Spray Society ASM International*.

Deux doctorants du CEA – Gramat primés à l'ARA

Lors de son workshop annuel qui porte sur la technologie des lanceurs de laboratoire, l'ARA (Aeroballistic Range Association) a récompensé des innovations en métrologie détonique en décernant un prix à deux doctorants du CEA – Gramat : **Sandra PŒUF** pour l'étude de la composition des produits de détonation en fin d'expansion, dans le but d'améliorer les équations d'état de ces produits, et **Benoît ROUGIER** pour la technique de radio-interférométrie à 94 GHz qui permet de traquer en continu la position des ondes de choc dans la matière condensée.

Prix du meilleur poster de la Société chimique de France

Lors de son congrès national organisé à Tours, la Société chimique de France a décerné le prix du meilleur poster à **Jean-Louis VICTOR**, doctorant au CEA – Le Ripault. Sa thèse porte sur l'étude et l'élaboration de dispositifs thermochromes pour l'efficacité énergétique.

➔ FAITS MARQUANTS DE L'ANNÉE 2017

Une chaire pour la métallurgie métallique

La chaire DIGIMU, pour « Développement d'un cadre innovant et global pour la modélisation des évolutions de microstructures intervenant lors des procédés de mise en forme des métaux », a été créée. Elle est cofinancée par l'Agence nationale de la recherche (ANR) et le consortium composé du CEA, de Safran, d'Aubert & Duval, d'ArcelorMittal, de Framatome et d'Ascometal. Pilotée par Mines ParisTech et en association avec l'éditeur de logiciel Transvalor, elle développe une « métallurgie numérique », concrétisée par un outil logiciel opérationnel qui aidera les entreprises à innover.

Otice : le réseau hydroacoustique est opérationnel dans sa totalité

L'Organisation du traité d'interdiction complète des essais nucléaires a certifié la station hydroacoustique de Crozet. Cette certification est le résultat d'un travail collectif de l'Otice, de la société L3-Maripro, des Terres australes et antarctiques françaises et du CEA – DAM. Cette station complète le réseau hydroacoustique de l'Otice, désormais opérationnel dans sa totalité. Elle est considérée par l'organisation comme « l'Everest » des stations hydroacoustiques, compte tenu des conditions hostiles qui y règnent.

Premiers succès pour Tera 1000-2

La machine Tera 1000-2, réalisée par Atos/Bull, a une architecture qui préfigure celle de la classe exaflopique qui doit être mise en service en 2021 au CEA – DAM. Avec un peu plus d'un tiers de Tera 1000-2 assemblé en octobre, elle atteint déjà le 23^e rang mondial du Top 500 pour une puissance crête de l'ordre de 10 pétaflops et une performance par le test du Linpack de 5 pétaflops (1 million de milliards d'opérations par seconde). Les tests de certains codes de garantie des armes donnent des résultats très satisfaisants, de même que le faible niveau de consommation électrique du calculateur. La totalité de l'assemblage de Tera 1000-2 s'est terminée fin 2017 pour une puissance crête nominale de 25 pétaflops.

Colloque CEA-AWE sur l'éjection de matière et les mélanges

Le CEA – DAM Île-de-France et l'Atomic Weapons Establishment Aldermaston (AWE, Royaume-Uni) ont organisé, à Paris, un colloque intitulé « Turbulent Mixing and Ejecta at Interfaces ». Ce colloque a rassemblé plus de 35 personnes provenant de ces deux organismes ainsi que de nombreux spécialistes des communautés académiques française et britannique. Il a permis de fructueuses discussions sur plusieurs sujets d'intérêt commun (éjection de matière, instabilités d'interface, modélisation de la turbulence), ainsi que la définition de nouveaux thèmes de collaboration.

Séminaire ARA « Rentrée atmosphérique : enjeux et perspectives »

Avec le soutien de la Région Nouvelle-Aquitaine, du CEA – DAM, d'Arianegroup, de la DGA, des pôles de compétitivité Route des lasers et des hyperfréquences et Aerospace Valley, l'Association pour la rentrée atmosphérique (ARA) a organisé à l'Institut lasers et plasmas, aux portes du CEA – Cesta, un séminaire sur le thème « Rentrée atmosphérique : enjeu et perspectives ». La manifestation a permis de réaffirmer l'importance du domaine au niveau régional et national, d'identifier les besoins futurs et de présenter l'offre de compétences en mesure d'y répondre en initiant de nombreux contacts.

Workshop Abinit : Abinit hands-on 2017

Organisé au CEA – DAM Île-de-France, le workshop Abinit a rassemblé trente-cinq participants qui ont discuté de l'utilisation du code Abinit pour la modélisation *ab initio* des matériaux et de l'extension des calculs standard de structure électronique au cas de grands systèmes complexes.

Réception du laser PETAL et première campagne d'ouverture LMJ-PETAL

Le 27 octobre, la Région Nouvelle-Aquitaine, maître d'ouvrage du projet PETAL, a prononcé la réception du laser PETAL. Cet acte finalise les douze ans de travaux du projet pendant lesquels se sont succédés la faisabilité, le développement, la réalisation, le montage, la mise en route et la mise en service du laser PETAL au sein de l'installation Laser Mégajoule (LMJ). Par ailleurs, la première campagne d'ouverture LMJ-PETAL, conduite par une équipe internationale (Royaume-Uni, États-Unis, Suisse, France, Corée du Sud), a été réalisée en décembre. Elle consistait à étudier, à échelle millimétrique, les champs magnétiques galactiques générés dans des zones turbulentes de collisions de plasmas. Le principe de l'expérience était de créer deux plasmas sur une cible principale éclairée par les 16 faisceaux LMJ, de les rendre turbulents et de les faire se rencontrer. Les champs magnétiques générés dans la zone d'interaction étaient sondés par un faisceau de protons produits par l'interaction du faisceau PETAL sur une cible secondaire métallique. Les conditions de réalisation des expériences sont conformes aux caractéristiques attendues, ainsi qu'à la précision exigée en termes de synchronisation des impulsions LMJ et PETAL sur cible. Les images obtenues par les diagnostics plasma sont d'une qualité remarquable.

3^{es} journées Matériaux numériques

Les 3^{es} journées Matériaux numériques se sont déroulées à Tours avec plus de 65 participants académiques représentants de laboratoires nationaux (CEA – DAM, SIMAP, Mines Paristech, etc.). Organisées par le CEA – Le Ripault, ces journées ont rassemblé les acteurs de la communauté nationale autour des thématiques de l'analyse, de la numérisation d'images de microstructures de matériaux, de la génération de milieux virtuels, de la modélisation de l'endommagement des matériaux, des lois de comportement mécanique et thermique de matériaux composites. Compte tenu du succès rencontré, une quatrième édition est en préparation.

Deuxième conférence CBRNE-Research & Innovation

Coorganisée par le CEA – DAM, la DGA, le Service de santé des armées et la Fédération nationale des sapeurs-pompier de France, la deuxième conférence scientifique internationale contre les risques et menaces nucléaires, radiologiques, biologiques, chimiques et explosifs s'est tenue à Lyon. Elle a réuni près de 500 participants venus de plus de 20 pays. Les industriels étaient largement représentés avec 25 sponsors et une vingtaine de stands. Porté par le CEA, le programme interministériel R&D NRBC-E y a été amplement représenté.

Atelier Quantum@CEA

Organisé par plusieurs directions du CEA et relatif aux programmes de recherche en ingénierie quantique, l'atelier Quantum@CEA s'est tenu au CEA – DAM Île-de-France. Quarante-vingt-dix participants, du CEA et des communautés scientifique, industrielle et académique ont débattu d'applications innovantes des propriétés quantiques singulières de la matière, comme l'intrication, la non-localité, la superposition d'états, etc.



La validation de méthode en spectrométrie d'émission optique à source plasma

De l'échantillon au résultat.

Fabien Pilon (CEA – Le Ripault), A. Labet, Karine Vielle (CEA – Le Ripault), O. Vigneau, G. Granier, P. Bienvenu, J.-M. Mermet (Sous la direction de)

→ Cet ouvrage collectif, piloté par le CEA – Le Ripault, est consacré à une technique d'analyse élémentaire largement déployée dans les laboratoires de caractérisation. Trente-huit spécialistes travaillant dans des laboratoires de recherche de grands organismes (AREVA, CEA, EDF, IRSN, etc.) et d'universités (Pau, Lyon 1) y ont contribué durant plus de dix ans.

EDP Sciences, Collection CETAMA, 310 pages. ISBN 978-2-7598-2062-7.



Langage, vérité, exactitude

Jean-Luc Feugeas (CEA – Cesta) et al. (Collectif)

→ Ces textes sont issus de colloques et séminaires ayant pour thème la problématique *Langage, vérité, exactitude*. Parmi les questionnements communs des contributeurs sont abordées les interrogations sur la dénomination des objets, des modèles et des théories.

Cahiers art et science, numéro spécial 9, éd. Confluences, 269 pages. ISBN 978-2-35527-209-7.

Structural Materials for Generation IV Nuclear Reactors

Patrick David (CEA – Le Ripault), auteur du chapitre "Carbon/Carbon materials for Generation IV Nuclear Reactors" (p. 471-493)

→ Ce livre présente l'état de l'art du comportement des matériaux en environnement neutronique, corrosif et haute température des réacteurs de génération IV. Le chapitre sur les Carbon/Carbon décrit les composants envisagés avec ces matériaux, leurs modes de fabrication ainsi que leurs propriétés et, au travers d'une analyse critique, leurs comportements en fonction de leurs microstructures.

Pascal Yvon (éd.), Woodhead Publishing, Elsevier, 684 pages. ISBN 978-0-08-100906-2.

Laboratoire de recherche conventionné (LRC) Sage

Le 27 novembre a été officiellement lancé le laboratoire de recherche conventionné Sage (Sciences appliquées au génie électrique) entre le CEA – Gramat, le CEA – Cesta et l'université de Pau et des pays de l'Adour ; le laboratoire concerné est le Siame (Sciences pour l'ingénieur en mécanique et génie électrique). Cette convention donne de la visibilité et de la pérennité aux collaborations scientifiques existantes qui se matérialisent déjà par des projets en commun et des thèses.

Projet ATIHS

Soutenu par le Cnes et labellisé par le pôle Aerospace Valley, le projet collaboratif FUI ATIHS (Amélioration de la tenue des structures satellites aux impacts hypervitesse de débris spatiaux) a été officiellement lancé, réunissant deux industriels et des laboratoires dont deux du CEA – Saclay et du CEA – Cesta. Avec pour objectif le développement de technologies pour la protection des satellites soumis à des impacts de débris, il comprend le développement de nouveaux moyens d'essai et la mise en œuvre de méthodologies numériques permettant d'augmenter les capacités et la fiabilité des calculs.

École universitaire de recherche LIGHTS&T

Porté par l'université de Bordeaux, le projet d'École universitaire de recherche (EUR, ou Graduate school) dans le domaine des Sciences et technologies de la lumière (LIGHTS&T) a été retenu au titre du Programme d'investissements d'avenir. L'objectif des EUR est de renforcer l'impact et l'attractivité internationale de la recherche et de la formation en rassemblant des formations de Master et de doctorat adossées à des laboratoires de recherche de haut niveau. Le CEA – DAM est impliqué au travers du CELIA, UMR dont le CEA est tutelle.

Projet OCEAN-ALM

Le projet OCEAN – ALM, pour Optimisation et conception pour une méthodologie avancée pour l'ALM (*Additive Layer Manufacturing*), vise, dans un contexte industriel (CEA et SEIV) et académique, à définir des outils et des méthodes pour : former le concepteur à tirer parti des opportunités offertes par la fabrication additive ; permettre au concepteur d'intégrer au plus tôt les spécificités de fabrication ; minimiser les écarts entre le modèle théorique et la pièce après fabrication. Il met en œuvre cinq thèses et deux contrats postdoctoraux. La réunion de lancement du projet OCEAN a rassemblé l'ensemble des partenaires au CEA – Cesta.

Groupe de recherche Recristallisation et croissance des grains

Le CEA – Valduc a conclu une convention de participation au Groupe de recherche (GDR) 2006 intitulé « Recristallisation et croissance des grains ». Le GDR vise à regrouper la communauté scientifique française concernée par les mécanismes de recristallisation : étude, modélisation et prise en compte dans des problématiques industrielles. La grande diversité des partenaires (industriels, académiques) et le large spectre des matériaux étudiés (métaux, glace, géomatériaux...) permettent d'élargir et d'associer les différentes approches.

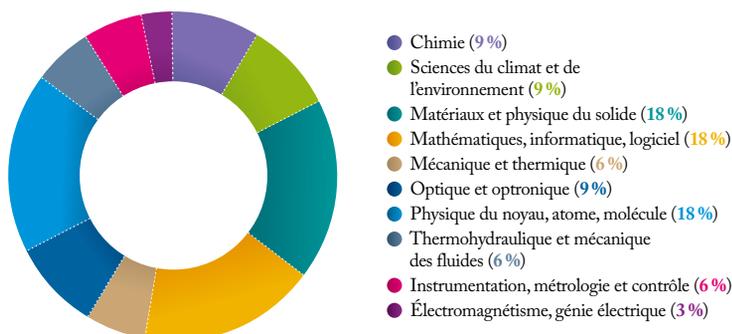
Projet SEIGLE

Le projet SEIGLE (Simulation expérimentation de l'interaction de gouttes liquides avec un écoulement fortement compressible) repose sur un partenariat entre le CEA – DAM, l'institut Pprime à Poitiers et l'Inria. La réunion de lancement a permis des échanges techniques fructueux et une meilleure connaissance mutuelle entre les parties, dans les domaines de l'expérimentation, de la modélisation physique et des méthodes numériques.

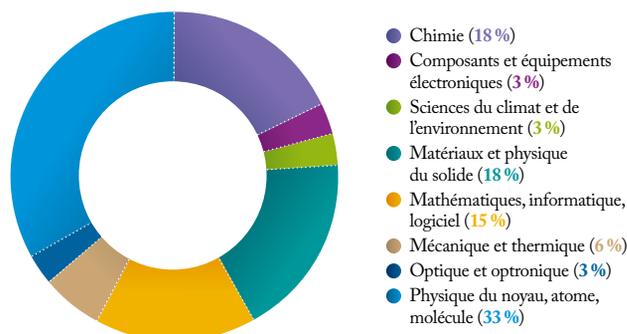
THÈSES SOUTENUES ET EN PRÉPARATION - POSTDOCTORATS

En 2017, 136 doctorants préparaient une thèse au CEA – DAM ; 34 l'ont soutenue au cours de l'année. D'autre part, 33 docteurs étaient en contrat postdoctoral.

Répartition des thèses soutenues par domaine scientifique et technique



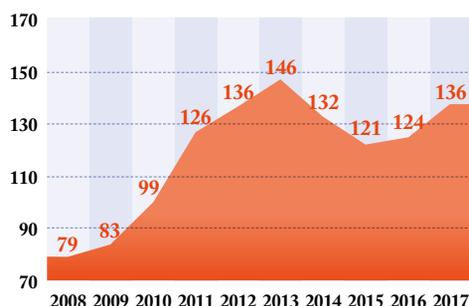
Répartition des postdoctorats par domaine scientifique et technique



Nombre de thèses soutenues 2008-2017



Nombre de thèses en cours 2008-2017



HABILITATIONS À DIRIGER LES RECHERCHES

Gaël Huser

CEA – DAM Île-de-France

Université Pierre-et-Marie-Curie –
Spécialité : Physique des plasmas.

Christophe Rousseaux

CEA – DAM Île-de-France

Université Paris-Sud Orsay –
Spécialité : Physique des plasmas.

Fabien Pointurier

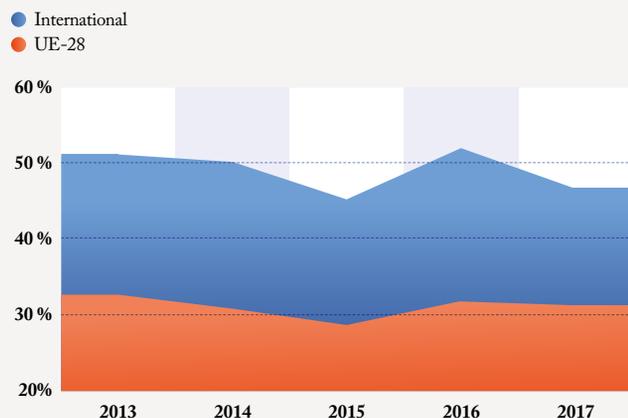
CEA – DAM Île-de-France

Université de Pau et des pays de l'Adour –
Spécialité : Chimie analytique.

PUBLICATIONS SCIENTIFIQUES ET TECHNIQUES

En 2017, le CEA – DAM a publié 402 articles et comptes rendus de conférence dans des journaux à comité de lecture, ainsi que 108 comptes rendus de conférence dans un livre ou dans une série.

Proportion de publications en collaboration internationale



Nombre de HDR soutenues 2008-2017



CHIMIE

- **Julien CELLIER**, *Amélioration de la durée de vie de membranes nanocomposites hybrides pour pile à combustible du type PEMFC. Étude des relations structure/propriétés. Comportement hydrique et vieillissement en milieu acide de membranes nanocomposites*, Université de Tours.
- **Juliette PIQUARD**, *Étude des perturbations optiques et du crazing dans les cristaux de DKDP*, Université Grenoble-Alpes.
- **Christopher CHARTON**, *Étude des interfaces électrodes/électrolyte de batteries lithium-ion 5 V type graphite/LiNi_{0,5}Mn_{1,5}O₄*, Université de Tours.

SCIENCES DU CLIMAT ET DE L'ENVIRONNEMENT

- **Roser HOSTE-COLOMER**, *Variations latérales de sismicité le long du mégachevauchement himalayen au Népal*, École normale supérieure de Paris.
- **Roberto SABATINI**, *Simulation directe 3D de la propagation non linéaire des ondes acoustiques dans l'atmosphère terrestre*, École centrale de Lyon.
- **Malorie DIERICK**, *Utilisation des isotopes de l'oxygène pour la détermination de l'origine et des transformations des oxydes d'uranium dans le cycle du combustible nucléaire*, Institut de physique du globe de Paris.

MATÉRIAUX, PHYSIQUE DU SOLIDE

- **Joris VERMUNT**, *Étude de la fragmentation dynamique d'enveloppe métallique accélérée*, École des Mines de Saint-Etienne.
- **Adrien GILLARD**, *Caractérisation et modélisation du comportement thermomécanique de composites 3D C/C*, Université de Bordeaux.
- **Caroline ROLAND**, *Formation de microjets depuis des défauts de surface dans des échantillons métalliques soumis à des chocs laser*, École nationale supérieure de mécanique et d'aérothermique.
- **Adrien MARIZY**, *Superhydrures sous pression pour le stockage de l'hydrogène et la supraconductivité : développement d'outils et résultats sur H₂S, CrH_x, LiBH₄ et NaBH₄*, Université Paris-Saclay.
- **Simon BARDY**, *Contrôle et optimisation du test d'adhérence par choc laser sur assemblages collés*, École nationale supérieure d'arts et métiers.
- **Alexandre ALLEMAND**, *Céramiques et composites pour applications en conditions extrêmes dans le nucléaire et le spatial*, Université de Bordeaux.

MATHÉMATIQUES, INFORMATIQUE SCIENTIFIQUE, LOGICIEL

- **Simon PELUCHON**, *Approximation numérique et modélisation de l'ablation liquide*, Université de Bordeaux.
- **Gautier DAKIN**, *Couplage fluide-structure d'ordre (très) élevé pour des schémas volumes finis 2D Lagrange-projection*, Université Pierre-et-Marie-Curie.
- **Thomas GONÇALVES**, *Contributions à la parallélisation de méthodes de type transport Monte-Carlo*, Université Grenoble-Alpes.
- **Rémi BARAT**, *Équilibrage de charge pour des simulations multiphysiques par partitionnement multicritères de graphes*, Université de Bordeaux.
- **Gérome FAURE**, *Micro-macro coupling for the simulation of shocks and detonation waves*, Université Paris-Est.
- **Julien RIDOUX**, *Contribution au développement d'une méthode de calcul rapide de propagation des ondes de souffle en présence d'obstacles*, Université Pierre-et-Marie-Curie.

MÉCANIQUE ET THERMIQUE

- **Jean-Baptiste GASNIER**, *Étude du comportement thermomécanique et de l'endommagement d'un matériau énergétique granulaire par méthodes de Fourier*, Université de recherche Paris Sciences et Lettres.
- **Pierre PRADEL**, *Étude de la compaction dynamique de mousses polymères : expériences et modélisation*, École nationale supérieure de mécanique et d'aérothermique.

OPTIQUE ET OPTRONIQUE

- **Pierre GOURIOU**, *Fibres microstructurées pour la mise en forme spatiale : fibres délivrant un mode fondamental aplati*, Université Lille 1.
- **Mathilde PFIFFER**, *Amélioration de la tenue au flux laser des composants optiques du Laser Mégajoule par traitement chimique*, Université de Bordeaux.
- **Florent SCOL**, *Amplification et transport fibré d'impulsions énergétiques pour les pilotes des installations laser de puissance*, Université Lille 1.

PHYSIQUE DU NOYAU, ATOME, MOLÉCULE

- **Aloïs CLÉMENT**, *Quantification de radionucléides par approche stochastique globale*, Université Clermont-Auvergne.
- **Emma LLOR AISA**, *Génération de très hautes pressions d'ablation laser et de chocs forts pour l'allumage des réactions de fusion nucléaire*, Université de Bordeaux.
- **Illia THIELE**, *Theoretical investigations of terahertz generation in laser-induced microplasmas*, Université de Bordeaux.
- **Cédric NEUVILLE**, *Étude expérimentale des effets multifaisceaux sur l'instabilité de diffusion Brillouin stimulée*, Université Paris-Saclay.
- **Marc VERRIÈRE**, *Description de la dynamique de fission dans le formalisme de la coordonnée génératrice dépendante du temps*, Université Paris-Saclay.
- **Mathieu BAILLY-GRANDVAUX**, *Forts champs magnétiques et décharges de courants intenses générés par laser : mesures et applications au transport de particules chargées*, Université de Bordeaux.

THERMOHYDRAULIQUE ET MÉCANIQUE DES FLUIDES

- **Sébastien COURTIAUD**, *Simulation de la postcombustion turbulente des produits de détonation avec l'air*, Université Paul-Sabatier Toulouse III.
- **Cyril LEVET**, *Ablation de matériaux carbonés sous très haut flux : étude multiphysique et couplage avec l'écoulement*, Université de Bordeaux.

INSTRUMENTATION, MÉTROLOGIE ET CONTRÔLE

- **Laura LE BARBIER**, *Conception d'un interféromètre optoélectronique pour la mesure de vitesses en dynamique des matériaux*, Université Paul-Sabatier Toulouse III.
- **Jérémie FOURMANN**, *Développement d'un système de mesure de pression dynamique en environnement extrême*, Université Paul-Sabatier Toulouse III.

ÉLECTROMAGNÉTISME, GÉNIE ÉLECTRIQUE

- **Juliette PIERRON**, *Développement de modèles de transport d'électrons à basse énergie (10 eV-2 keV) dans différents matériaux*, Université Paul-Sabatier Toulouse III.

➔ POSTDOCTORATS EN COURS EN 2017

CHIMIE

- ➔ **Florian BRULFERT**, *Étude des complexes formés dans la transferrine et le plutonium*, CEA – DAM Île-de-France.
- ➔ **Alexandre SONETTE**, *Développement d'un microspectromètre de masse sur puce silicium. Caractérisation expérimentale des microsystèmes*, CEA – DAM Île-de-France.
- ➔ **Angélica BIANCO**, *Caractérisation de la phase liquide atmosphérique par spectrométrie de masse haute résolution et évaluation de l'efficacité de transformation de ce milieu par la photochimie et l'activité biologique*, CEA – DAM Île-de-France.
- ➔ **Nelly RAMEAU**, *Développement de matériaux organiques pour cibles laser*, CEA – Le Ripault.
- ➔ **Thomas AUDICHON**, *Préparation et caractérisation électrochimique d'assemblages membrane électrodes pour électrolyseur PEM*, CEA – Le Ripault.
- ➔ **Barthélémy BRUNIER**, *Comportement en entreposage de produits recyclables contenant des actinides : étude des dégagements gazeux*, CEA – Valduc.

COMPOSANTS ET ÉQUIPEMENTS ÉLECTRONIQUES

- ➔ **Jonathan RIFFAUD**, *Modélisation et simulation des effets induits par irradiation dans les composants et circuits microélectroniques*, CEA – DAM Île-de-France.

SCIENCES DU CLIMAT ET DE L'ENVIRONNEMENT

- ➔ **Cécile CLÉMENT**, *Tsunamis en océan Atlantique NE. Tests numériques et modélisation de scénario pour l'évaluation du risque*, CEA – DAM Île-de-France.

MATÉRIAUX, PHYSIQUE DU SOLIDE

- ➔ **Magali THOMÉ**, *Caractérisation microstructurale et comportementale d'isolants architecturés élaborés par fabrication additive*, CEA – Le Ripault.
- ➔ **Raphaëlle BERNARDIE**, *Développement de structures autoportées en superalliages par technologie CSAM (Cold Spray Additive Manufacturing)*, CEA – Le Ripault.
- ➔ **Jean-Fabien PETIT**, *Localisation du liant dans un explosif comprimé en utilisant des techniques de résonance magnétique nucléaire*, CEA – Le Ripault.

➔ **Aurélien FABAS**, *Étude de la durabilité de matériaux métalliques obtenus par fabrication additive*, CEA – Valduc.

➔ **Matthieu BRUSSON**, *Étude de l'influence de la granulométrie de la poudre de Pd sur les propriétés de stockage du tritium*, CEA – Valduc.

➔ **Bertrand BAUBET**, *Étude in situ des mécanismes d'adsorption de molécules gazeuses, d'apparition de produits de corrosion sur matériaux métalliques par spectrométrie IR en incidence rasante et thermogravimétrie et d'évolution des surfaces par microscopie AFM*, CEA – Valduc.

MATHÉMATIQUES, INFORMATIQUE SCIENTIFIQUE, LOGICIEL

➔ **Aude GIARD**, *Développement d'outils de simulation, de post-traitement et de visualisation à l'échelle atomique adaptés aux futurs calculateurs exaflopiques*, CEA – DAM Île-de-France.

➔ **Noël MARTIN**, *Construction et utilisation de métamodèles*, CEA – DAM Île-de-France.

➔ **Jordan MATHE**, *Modélisation chimique pour la rentrée atmosphérique en haute atmosphère*, CEA – Cesta.

➔ **Nicolas THERME**, *Mise au point et développement de modèles physiques et de méthodes numériques innovantes dédiés à la simulation numérique de la réponse dynamique de matériaux suite à des sollicitations intenses*, CEA – Cesta.

MÉCANIQUE ET THERMIQUE

➔ **Émile RENNER**, *Modélisation 3D de la rupture des matériaux granulaires fragiles sur un volume représentatif de la microstructure des matériaux céramiques*, CEA – Le Ripault.

➔ **Yohann SCARINGELLA-GUERRITAT**, *Optimisation thermique et mécanique de la microstructure d'un isolant*, CEA – Le Ripault.

OPTIQUE ET OPTRONIQUE

➔ **Pierre ROLIN**, *Amélioration de la qualité des reconstructions 3D en zones urbaines à partir d'imagerie satellitaire stéréoscopique*, CEA – DAM Île-de-France.

➔ **Kevin EHRARDT**, *Simulation numérique des propriétés optiques de films à structure multiéchelle*, CELIA.

PHYSIQUE DU NOYAU, ATOME, MOLÉCULE

➔ **Luc ANDREA**, *Détermination, dans un formalisme entièrement ab initio, du coefficient de diffusion du xénon dans le dioxyde d'uranium*, CEA – DAM Île-de-France.

➔ **Lucas BAGUET**, *Calcul de spectres Raman dans le formalisme Projector Augmented-Wave. Implémentation dans le code Abinit*, CEA – DAM Île-de-France.

➔ **David BOUSQUET**, *Modélisation des polymères sous pression*, CEA – DAM Île-de-France.

➔ **Witold CAYZAC**, *Étude du pouvoir d'arrêt de particules chargées par un plasma dégénéré*, CEA – DAM Île-de-France.

➔ **Asénath ETILE**, *Étude de la production d'isomères dans les fragments de fission (C-BORD)*, CEA – DAM Île-de-France.

➔ **Guillaume HUPIN**, *Couplage au continuum et noyaux exotiques*, CEA – DAM Île-de-France.

➔ **Richard RENOU**, *Simulation de l'endommagement des verres sous choc par dynamique moléculaire classique*, CEA – DAM Île-de-France.

➔ **Gaétan SARY**, *Simulation cinétique de la physique de l'interaction laser-plasma en fusion par confinement inertiel*, CEA – DAM Île-de-France.

➔ **David BLACKMAN**, *Description et caractérisation des ondes plasmas possédant un moment angulaire orbital*, CELIA.

➔ **Milan HOLEC**, *Modélisation du flux de chaleur non local par une méthode aux moments*, CELIA.

➔ **Pedro GONZALEZ DE ALAISA MARTINEZ**, *Numerical Modeling of High-Intensity Laser Matter Interaction*, CELIA.

D. Bénisti,
C. Rousseaux,
L. Gremllet
CEA – DAM Île-de-France

K. Glize, V. Dervieux, S. D. Baton, L. Lancia
Laboratoire pour l'utilisation des lasers intenses (LULI),
UMR 7605 CNRS – CEA – École polytechnique – Université Pierre-
et-Marie-Curie, Palaiseau

NON-LOCALITÉ DE L'INTERACTION LASER-PLASMA

L'interaction laser-plasma, étudiée dans le cadre de la fusion par confinement inertiel, révèle bien des surprises. L'une d'entre elles est la capacité du plasma à se transformer en un miroir rétrodiffusant une partie de l'énergie laser incidente.

C'est principalement la conséquence d'un effet physique appelé diffusion Raman stimulée qui, en entravant la propagation laser, s'avère néfaste pour l'atteinte de la fusion. Cet effet peut être d'une redoutable efficacité à cause de son caractère non local en espace et en temps, que cet article décrit au travers de résultats théoriques et expérimentaux.

Pour réaliser la fusion par confinement inertiel dans le schéma dit d'attaque indirecte, un rayonnement laser doit traverser une cavité remplie d'un gaz tampon qui s'ionise rapidement pour se transformer en plasma. Sous l'effet du laser, les électrons du plasma engendrent des champs électrostatiques collectifs qui se propagent de manière cohérente : ce sont des ondes plasma. Par diffusion Raman stimulée, ces ondes transfèrent une partie de l'énergie laser incidente vers une onde rétrodiffusée : le plasma se comporte alors comme un miroir.

Les ondes plasma possèdent plusieurs propriétés fascinantes comme celle, montrée par Landau en 1946, de s'amortir même en l'absence de collisions. Pour qu'elles puissent être excitées de manière effective par un champ laser, cet amortissement doit être vaincu, ce qui requiert une intensité suffisante. C'est principalement ce qui fixe le seuil en intensité laser de la diffusion Raman stimulée. Il dépend alors, d'une part, d'une propriété intrinsèque de l'onde, sa vitesse de phase, et, d'autre part, de la façon dont les vitesses des électrons sont réparties, ce que l'on quantifie grâce à la fonction de distribution électronique $f(v)$. À l'équilibre thermodynamique, $f(v)$ est dite maxwellienne et, dans un plasma de fusion maxwellien, l'amortissement de Landau est généralement fort. Cependant, une onde plasma

étant de nature électrostatique, elle peut piéger des électrons dans son potentiel, à condition que son amplitude soit suffisamment grande. Lorsque cela arrive, $f(v)$ s'en trouve modifiée : les électrons ne sont plus maxwelliens. À l'aide d'une théorie adiabatique **1**, on montre que la fonction de distribution des électrons qui ont été piégés est symétrique par rapport à la vitesse de phase de l'onde, v_ϕ . En conséquence, le taux d'amortissement de Landau, proportionnel à $-f'(v_\phi)$, s'annule et l'onde plasma est excitée beaucoup plus efficacement. Les électrons non maxwelliens peuvent se propager dans tout le plasma et relaxent lentement vers l'équilibre thermodynamique. Ainsi, ils réduisent l'amortissement Landau et donc le seuil en intensité laser de la diffusion Raman stimulée, au-delà de l'endroit où ils ont été créés et sur des temps longs à l'échelle de la croissance des ondes. Cela fait de la diffusion Raman stimulée un processus non local, en espace et en temps, ce qui accroît son efficacité.

Cette propriété a été observée expérimentalement **2** en étudiant la diffusion Raman stimulée induite par un laser picoseconde dont l'intensité est au-dessous du seuil pour un plasma maxwellien. Si ce laser, dit faible, se propage seul dans un tel plasma, la fraction d'énergie rétrodiffusée, appelée réflectivité Raman, est nulle. Or, on mesure expérimentale-

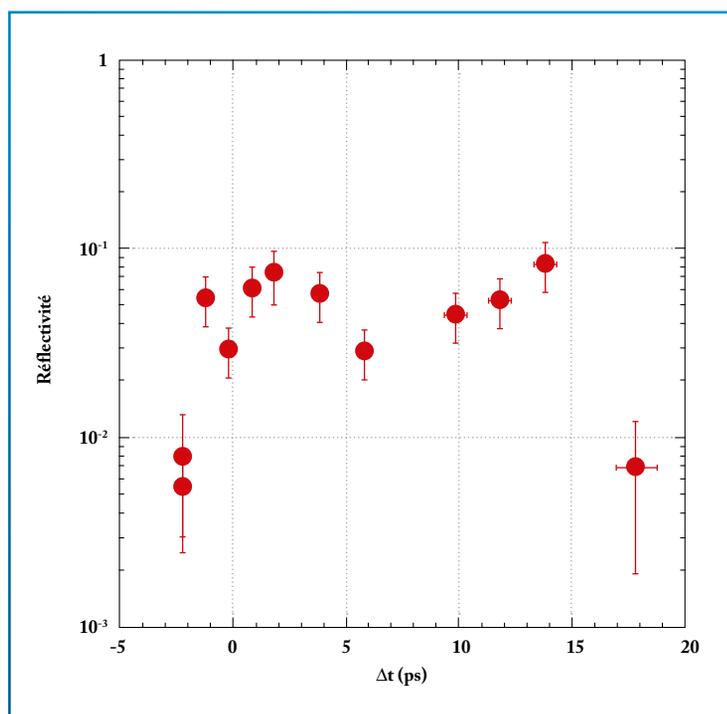


Figure 1

➔ Réfectivité Raman mesurée pour un laser de durée d'impulsion 1,5 ps, dont l'intensité est au-dessous du seuil de la diffusion Raman stimulée dans un plasma maxwellien **2**. Ce laser est focalisé dans le plasma après un laser de même durée d'impulsion, mais dont l'intensité est au-dessus du seuil. La réfectivité du laser dit faible est représentée en fonction du délai Δt entre les instants où les deux lasers sont envoyés dans le plasma. Les faisceaux laser, séparés latéralement par une distance supérieure à la largeur de leur tache focale, ne se recouvrent pas spectralement. La densité électronique moyenne du plasma est proche de $6 \times 10^{19} \text{cm}^{-3}$ et sa température vaut 300 eV. Cette expérience, réalisée sur l'installation ELFIE du LULI, a mis en évidence la non-localité en espace et en temps de la diffusion Raman stimulée.

ment une réfectivité de l'ordre de 10 % au niveau du laser faible s'il se propage en même temps qu'un laser fort, dont l'intensité est au-dessus du seuil, bien que les taches focales soient trop éloignées pour se recouvrir. Comme le montre la **figure 1**, cette réfectivité ne change guère si l'on focalise d'abord le fort dans le plasma, puis le faible après un délai Δt inférieur à 15 ps. Cela prouve le caractère non local en espace et en temps de la diffusion Raman stimulée. Pour les plus grandes valeurs de Δt , les ondes engendrées par le laser fort ont depuis longtemps quitté le plasma. La non-localité est donc due aux électrons non maxwelliens, même si leur genèse et leur rôle peuvent être plus complexes que ce qui a été décrit précédemment. Lorsque $\Delta t < 3$ ps, ces électrons n'ont pas le temps d'atteindre le laser faible et la non-localité résulte alors des ondes créées par le laser fort. En éclairant le laser faible, ces ondes jouent le rôle de germes pour sa diffusion Raman stimulée, dont elles abaissent ainsi le seuil.

Lors des expériences sur le National Ignition Facility, des réfectivités de plusieurs dizaines de pour cent ont été relevées. La diffusion Raman stimulée est donc un effet important qu'on souhaite pouvoir estimer *a priori* pour chercher à le réduire. Or, la tache focale d'un laser est composée de millions de zones de surintensité qui communiquent

entre elles, et où les effets non locaux sont donc potentiellement importants. Les travaux résumés dans cet article ont permis d'aboutir à une modélisation de la diffusion Raman stimulée **3** qui tient compte de sa non-localité et qui se veut prédictive. Ce modèle, qui doit encore être confronté à l'expérience, est à ce jour le plus abouti au monde.

RÉFÉRENCES

- 1** D. BÉNISTI, "Nonlocal adiabatic theory. I. The action distribution function", *Phys. Plasmas*, **24**, 092120 (2017).
- 2** K. GLIZE, C. ROUSSEAU, D. BÉNISTI *et al.*, "Stimulated backward Raman scattering driven collectively by two picosecond laser pulses in a bi- or multi-speckle configuration", *Phys. Plasmas*, **24**, 032708 (2017).
- 3** D. BÉNISTI, "Self-consistent theory for the linear and nonlinear propagation of a sinusoidal electron plasma wave. Application to stimulated Raman scattering in a non-uniform and non-stationary plasma", *Plasma Phys. Control. Fusion*, **60**, 014040 (2018).

X. Vaisseau, M. Touati, S. Hulin, P. Nicolai, R. Nuter, D. Batani, J. Breil, J.-L. Feugeas,
P. Forestier-Colleoni, C. Fourment, L. Giuffrida, V. T. Tikhonchuk, J. J. Santos
Centre lasers intenses et applications (CELIA), UMR 5107 CNRS – CEA – Université de Bordeaux, Talence

A. Morace, S. Fujioka
Institute of Laser
Engineering, Osaka
University, Japon

F. N. Beg
University of
California, San Diego,
États-Unis

M. Nakatsutsumi, S. D. Baton
Laboratoire pour l'utilisation des lasers intenses (LULI),
UMR 7605 CNRS – CEA – École polytechnique – Université
Paris-Saclay, Sorbonne Universités, Palaiseau

R. Fedosejevs, S. Kerr
University of Alberta,
Canada

H. S. Mclean
Lawrence Livermore National
Laboratory, États-Unis

H. Sawada
University of Nevada,
États-Unis

EXPÉRIENCE DE COLLIMATION D'UN JET D'ÉLECTRONS RELATIVISTES PAR LE CARBONE VITREUX

La fusion nucléaire est une réaction entre noyaux atomiques légers qui s'associent pour créer un noyau atomique plus lourd en dégageant de l'énergie. Les conditions pour qu'elle se réalise sont difficiles à atteindre, car la température et la densité doivent être extrêmes. La fusion par confinement inertiel consiste à utiliser des lasers pour qu'une bille de combustible nucléaire atteigne ces conditions. Dans la stratégie dite d'allumage rapide, la phase de compression est découplée de la phase de chauffage. L'expérience décrite ici montre que l'utilisation d'un matériau très spécifique, le carbone vitreux, permet d'améliorer l'efficacité de la phase de chauffage. Cela s'explique par la plus grande résistivité du carbone vitreux, qui améliore la collimation du jet d'électrons responsable du transfert d'énergie entre le laser et le combustible comprimé.

L'allumage rapide **1** utilise un laser picoseconde pour déposer une grande quantité d'énergie dans le cœur dense d'une bille préalablement comprimée. Malheureusement, le laser ne peut pénétrer jusqu'au cœur et il est stoppé à

la surface. Cependant, il est possible d'utiliser les électrons comme vecteurs du transfert d'énergie entre la surface et le cœur. Afin de minimiser la distance que ces électrons auront à parcourir, la bille est pourvue d'un implant conique creux qui pointe vers le cœur. Une fois

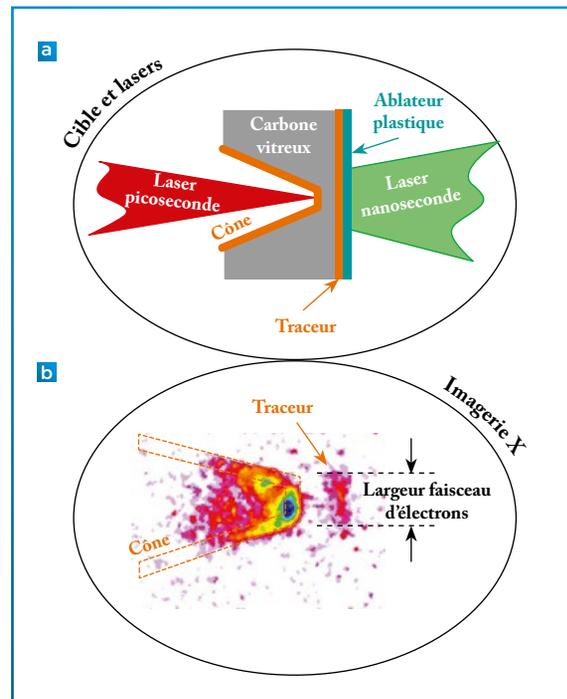
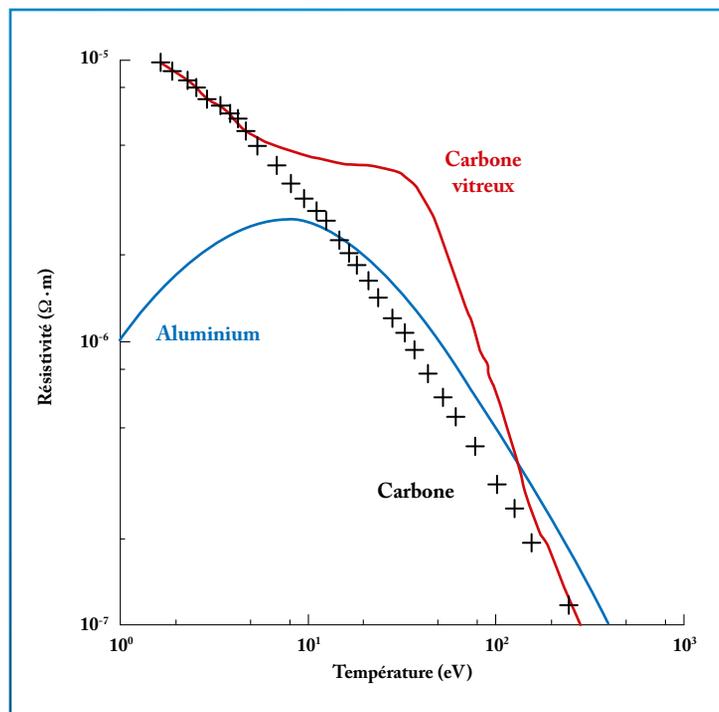


Figure 1

(a) Schéma de la cible avec ses différents composants et géométrie d'irradiation par les deux lasers. Le laser nanoseconde comprime la cible par la droite. Le laser picoseconde génère un jet d'électrons rapides à la pointe du cône par la gauche. Le cône et le traceur sont en cuivre, matériau qui émet un rayonnement caractéristique au passage d'électrons rapides. **(b)** Imagerie X du cuivre chauffé par le passage des électrons. La largeur de la zone d'émission à la position du traceur est comparable à la largeur de la pointe du cône : ainsi, grâce au carbone vitreux, le jet d'électrons garde sa taille.

Figure 2

▣ Courbes de résistivité de différents matériaux testés dans les simulations; la température indique l'énergie des électrons. La résistivité du carbone vitreux (courbe en rouge), plus élevée que celle d'un autre carbone (croix noires) ou de l'aluminium (courbe en bleu), explique pourquoi la collimation du jet d'électrons est meilleure qu'avec un autre matériau, grâce à un champ magnétique plus puissant qui confine mieux les électrons.



la compression atteinte, le faisceau laser accélère les électrons de la pointe du cône vers le cœur sous forme d'un jet. Il est primordial d'en limiter l'éclatement lors de sa propagation dans la zone de transfert, longue alors d'une centaine de microns. Dans l'expérience réalisée sur l'installation LULI2000 **2**, à Palaiseau, des cibles reproduisant la géométrie de l'allumeur rapide ont été utilisées (figure 1a). Un cône creux en cuivre a été enfoncé dans un bloc de carbone de telle sorte qu'il reste 50 μm entre la pointe du cône et la face de sortie du carbone. Sur cette face, un traceur de cuivre a été déposé puis une couche de plastique qui sert d'ablateur. La cible est irradiée successivement par deux faisceaux laser distincts. Un premier faisceau de longue durée (3 nanosecondes) comprime la cible du côté du plastique, en direction du cône. Un second faisceau de plus courte durée (1 picoseconde) crée un jet d'électrons de la pointe du cône vers le plastique. Or, le cuivre émet un rayonnement X caractéristique lorsqu'il est traversé par des électrons rapides. Ainsi, la taille du jet d'électrons est mesurée, à l'aide d'un système d'imagerie adapté, lorsqu'il tra-

verse d'abord le cône puis le traceur. Une image de ce type (figure 1b) montre que la taille du jet d'électrons ne change pas entre la pointe du cône et le traceur.

La simulation numérique reproduit cette expérience et montre que la collimation est directement liée au choix du matériau. Elle est forte avec du carbone vitreux, forme de carbone la plus amorphe, par opposition au diamant qui en est la forme la plus cristalline, parce qu'il présente une résistivité électrique très élevée **3** (figure 2). Or, un jet d'électrons induit un champ magnétique azimuthal

(tournant autour du jet) qui tente de le collimer. Plus la résistivité du matériau est élevée, plus ce champ est puissant et plus les électrons sont contraints autour de l'axe de propagation du jet.

Cette expérience a démontré que l'ajout d'un implant en carbone vitreux au bout du cône dans les futures cibles dédiées à l'allumage rapide permettra d'en améliorer les performances. Une confirmation à pleine échelle pourra être envisagée sur l'installation Laser Mégajoule-PETAL qui possède les deux types de faisceau laser adéquats.

RÉFÉRENCES

- 1** M. TABAK *et al.*, "Ignition and high gain with ultrapowerful lasers", *Phys. Plasmas*, **1**, p. 1626 (1994).
- 2** X. VAISSEAU, A. MORACE, M. TOUATI, M. NAKATSUTSUMI, S. D. BATON, S. HULIN, P. NICOLAÏ, R. NUTER, D. BATANI *et al.*, "Collimated Propagation of Fast Electron Beams Accelerated by High-Contrast Laser Pulses in Highly Resistive Shocked Carbon", *Phys. Rev. Lett.*, **118**, 205001 (2017).
- 3** P. MCKENNA *et al.*, "Effect of Lattice Structure on Energetic Electron Transport in Solids Irradiated by Ultraintense Laser Pulses", *Phys. Rev. Lett.*, **106**, 185004 (2011).

A. Casner, C. Mailliet, E. Le Bel, V. T. Tikhonchuk

Centre lasers intenses et applications (CELIA), UMR 5107 CNRS – CEA – Université de Bordeaux, Talence

S. F. Khan, D. A. Martinez, N. Izumi, D. Kalantar, P. Di Nicola,
J. M. Di Nicola, B. A. Remington, L. P. Masse, V. A. Smalyuk
Lawrence Livermore National Laboratory, États-Unis

I. Igumenshchev
Laboratory for Laser Energetics,
Rochester, États-Unis

QUALIFICATION D'UNE PLATEFORME EXPÉRIMENTALE D'HYDRODYNAMIQUE PLANE SUR LE NATIONAL IGNITION FACILITY

L'avènement des lasers de puissance de classe mégajoule, comme le Laser Mégajoule (LMJ) en France ou le National Ignition Facility (NIF) aux États-Unis, permet pour la première fois de créer en laboratoire des écoulements de plasmas denses et turbulents. En effet, ces installations autorisent des durées et des distances d'accélération d'échantillon beaucoup plus importantes qu'auparavant, favorables à l'apparition de régimes turbulents intéressants pour l'astrophysique de laboratoire. Cet article présente le principe et les premiers résultats d'une nouvelle plateforme en attaque dite directe sur le NIF, dédiée à des expériences d'hydrodynamique aux temps longs.

Dans le cadre des appels à propositions académiques « Discovery Science » sur le NIF, un programme de recherche portant sur le stade fortement non linéaire de l'instabilité de Rayleigh-Taylor au front d'ablation se poursuit depuis 2012 [1,2]. L'instabilité de Rayleigh-Taylor est une instabilité qui se développe à l'interface entre deux fluides, quand un fluide lourd est accéléré par un fluide léger. Dans le cadre de la fusion par confinement inertiel (FCI), l'instabilité de Rayleigh-Taylor au front d'ablation est un des facteurs limitant les performances des implosions de cibles cryogéniques. Au-delà de la FCI, on s'intéresse aussi au problème fondamental de la turbulence. En effet, le surcroît d'énergie et les durées d'impulsion laser plus longues offertes par les lasers mégajoule permettent de recréer, en laboratoire, des expériences de turbulence qui étaient jusqu'à maintenant réalisées uniquement avec des fluides classiques et non des plasmas [3].

Alors que les expériences précédentes avaient permis de mettre en évidence un régime de compétition – mélange de bulles bidimensionnelles (2D) pour l'instabilité de Rayleigh-Taylor au front d'ablation en attaque indirecte [4,5] –, on s'intéresse ici au cas de l'attaque directe. La première étape de ce travail consiste à qualifier une nouvelle plateforme et à en simuler les principales observables expérimentales.

GÉOMÉTRIE EXPÉRIMENTALE

Le schéma de l'expérience est représenté sur la figure 1. Entre 14 et 24 quadruplets (300 à 450 kJ d'énergie laser) de l'hémisphère Sud du NIF sont directement incidents sur l'échantillon accéléré (d'où la notion d'attaque directe). L'irradiation a été optimisée pour créer une irradiation uniforme sur une zone centrale de 2 mm de diamètre, avec une intensité laser maximum de $2 \times 10^{14} \text{ W}\cdot\text{cm}^{-2}$. L'impulsion laser totale dure 20 ou 30 ns, en concaténant

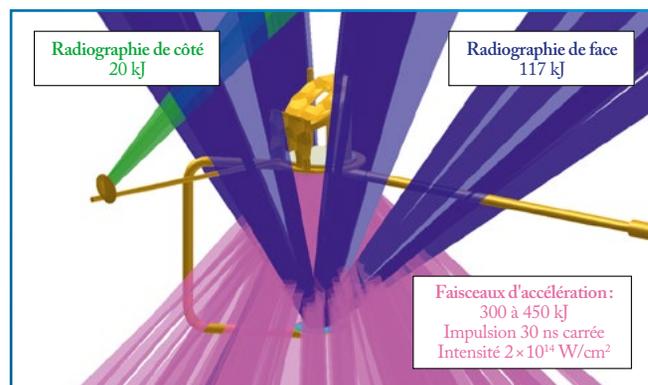


Figure 1

➔ Schéma d'irradiation de la plateforme NIF dévolue aux études d'hydrodynamique en attaque directe. Les faisceaux utilisés pour accélérer l'échantillon sont en rose, ceux pour irradier les sources de radiographie en bleu (radiographie de face) et vert (radiographie de profil).

dans le temps deux ou trois groupes de quadruplets partageant chacun une impulsion de 10 ns. Les mesures reposent sur des radiographies X, de face et de côté, résolues en temps. Le rayonnement de la source de radiographie de côté, en vanadium ou en zinc, est induit par le dépôt de l'énergie laser (20 kJ) d'un quadruplet. Le rayonnement de la source de radiographie de face en argent est engendré par 7 quadruplets, il est dirigé vers l'imageur X à images intégrales inséré dans le pôle Nord de la chambre.

La première étape de la campagne a consisté à s'assurer de la planéité du choc créé sur une expérience spécifique avec un échantillon épais de plastique (2 mm) pour visualiser la propagation du choc et du front d'ablation. La radiographie de côté correspondante enregistrée à $t=28$ ns est donnée sur la **figure 2a**. On constate que le front de choc et le front d'ablation sont remarquablement plans : la courbure n'excède pas $150 \mu\text{m}$ sur une zone centrale de 2 mm. Ces résultats sont bien reproduits par les simulations d'hydrodynamique radiative réalisées avec le code CHIC développé au CELIA **6**, tant pour la courbure que pour la position absolue des fronts de choc et d'ablation (**figure 2b**).

ÉVOLUTION D'UNE PERTURBATION BIDIMENSIONNELLE MONOMODE

La seconde étape de la campagne a consisté à calibrer le code d'hydrodynamique radiative CHIC utilisé au CELIA pour modéliser la croissance de perturbations initiales 2D préimposées (longueur d'onde $\lambda = 150 \mu\text{m}$, amplitude crête à crête $2a_0 = 1 \mu\text{m}$) sur une plaque mince de plastique ($300 \mu\text{m}$ d'épaisseur) accélérée pendant 20 ns. La radiographie de face (**figure 3a**) montre les alternances, à la longueur d'onde attendue, de

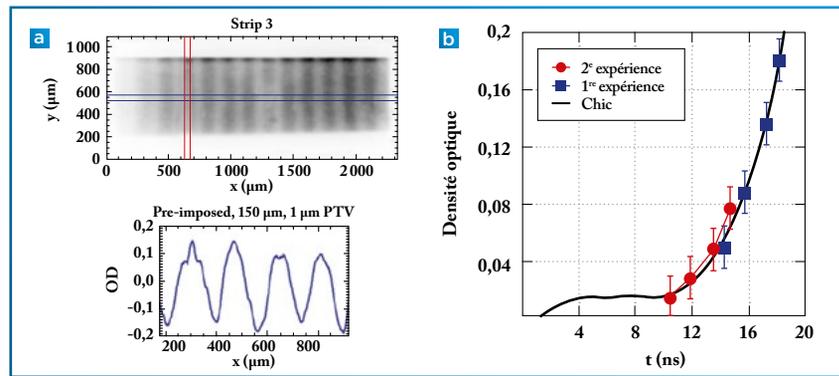


Figure 3

➔ (a) Radiographie de face enregistrée à $t=17,36$ ns correspondant à la croissance de modulations préimposées ($\lambda = 150 \mu\text{m}$, $2a_0 = 1 \mu\text{m}$). Une coupe horizontale (courbe bleue) illustre les modulations mesurées en densité optique après renormalisation par le profil de la source de radiographie. (b) Évolution des modulations en densité optique pour les deux expériences réalisées : les points expérimentaux et les calculs intégrés CHIC (en trait plein) sont en très bon accord.

zones plus ou moins absorbantes aux rayons X. On en extrait une amplitude de modulation en densité optique (**figure 3b**) qui peut ensuite être comparée aux simulations : l'évolution temporelle de l'amplitude des perturbations de l'instabilité de Rayleigh-Taylor au front d'ablation est en parfait accord avec les simulations CHIC et les interprétations réalisées post-campagne. De telles simulations sur des temps physiques de plus de 20 ns n'avaient encore jamais été réalisées, car elles nécessitent un grand nombre de mailles (du fait de la taille de l'échantillon), de nombreux tests préliminaires de maillage et un temps de calcul de près de trois semaines.

PERSPECTIVES : ÉVOLUTION D'UNE PERTURBATION TRIDIMENSIONNELLE MULTIMODE

Ces résultats **6** ont permis en premier lieu de valider une nouvelle plateforme académique sur le NIF, intéressante pour des expériences d'astrophysique de laboratoire ou d'équations d'état nécessitant une large zone d'irradiation

uniforme. En ce qui concerne l'instabilité de Rayleigh-Taylor ablative, la maîtrise de cette nouvelle plateforme a permis d'étudier la croissance de défauts 3D multimode. Ces données permettront d'affiner les théories et simulations du stade fortement non linéaire de l'instabilité de Rayleigh-Taylor ablative, facteur limitant les performances d'implosions de cibles cryogéniques, en attaque directe ou indirecte.

RÉFÉRENCES

- 1 A. CASNER *et al.*, "Designs for highly nonlinear ablative Rayleigh-Taylor experiments on the National Ignition Facility", *Phys. Plasmas*, **19**, 082708 (2012).
- 2 A. CASNER *et al.*, "Expériences d'instabilité Rayleigh-Taylor ablative en régime fortement non linéaire sur le National Ignition Facility", *Revue chocs avancées* 2012, p. 6-7 (2013).
- 3 F. DOSS *et al.*, "The Shock/Shear platform for planar radiation-hydrodynamics experiments on the National Ignition Facility", *Phys. Plasmas*, **22**, 056303 (2015).
- 4 A. CASNER *et al.*, "Probing the deep nonlinear stage of the ablative Rayleigh-Taylor instability in indirect drive experiments on the National Ignition Facility", *Phys. Plasmas*, **22**, 056302 (2012).
- 5 D. A. MARTINEZ *et al.*, "Evidence for a Bubble-Competition Regime in Indirectly-Driven Ablative Rayleigh-Taylor Instability Experiments on the NIF", *Phys. Rev. Lett.*, **114**, 215004 (2015).
- 6 A. CASNER *et al.*, "Long-duration planar direct-drive hydrodynamics experiments on the NIF", *Plasma Phys. Control. Fusion*, **60**, 014012 (2018).

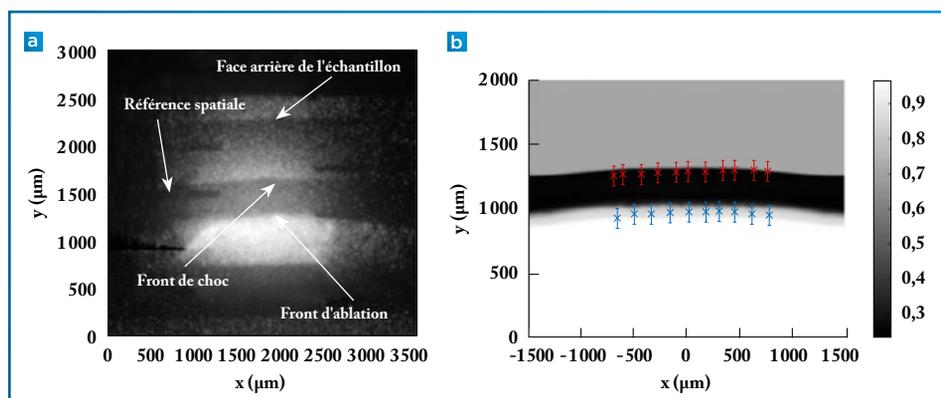


Figure 2

➔ (a) Radiographie X, résolution en temps, enregistrée à $t=28$ ns après le début de l'irradiation laser, réalisée pour vérifier la planéité des fronts de choc et d'ablation. (b) Radiographie synthétique issue d'un calcul à l'aide du code CHIC **6** ; les positions mesurées du front d'ablation et du front de choc sont respectivement indiquées par les croix bleues et rouges.

OPTIMISATION D'UN FAISCEAU D'ÉLECTRONS DANS UN ACCÉLÉRATEUR LASER-PLASMA

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 sonder des phénomènes physiques ultrarapides ou radiographier des objets avec une très bonne résolution spatiale. Cependant, afin d'ajuster les propriétés des faisceaux accélérés suivant l'application envisagée, il est important de développer et caractériser des solutions permettant de manipuler et contrôler leur production. À cette fin, une étude **1** a permis de montrer, à l'aide d'une simulation numérique, que la simple modification des propriétés d'un gradient de densité électronique généré dans la cible plasma permet de régler un grand nombre de caractéristiques du faisceau produit, telles que sa charge, sa durée, sa qualité spectrale ou son émittance transverse.

La focalisation d'un faisceau laser ultra-intense et ultracourt sur un jet de gaz conduit à la création d'un plasma peu dense par ionisation du gaz, dans lequel le faisceau laser peut se propager. Une onde plasma, caractérisée par une modulation de la densité électronique et par la génération d'un champ électrique longitudinal de grande amplitude, est alors générée dans le sillage du laser. Ce champ électrique, qui peut être de trois ordres de grandeur supérieur à ceux des accélérateurs conventionnels, est capable d'accélérer un faisceau d'élec-

trons à de très fortes énergies sur de très petites distances; une énergie de 4 GeV a aujourd'hui été atteinte expérimentalement sur moins de 10 cm. Cette compacité, ainsi que la taille micrométrique et la durée femtoseconde (10^{-15} s) des faisceaux générés représentent les principaux intérêts de ces accélérateurs laser-plasma. La volonté de mieux contrôler la génération du faisceau d'électrons a conduit à proposer la technique dite d'injection par gradient **2**, qui a déjà été mise en œuvre dans de nombreuses expériences. Les diverses applications envisagées

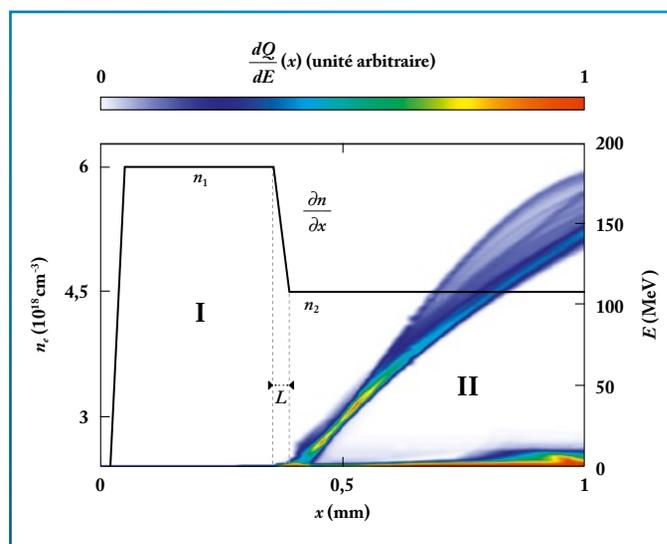
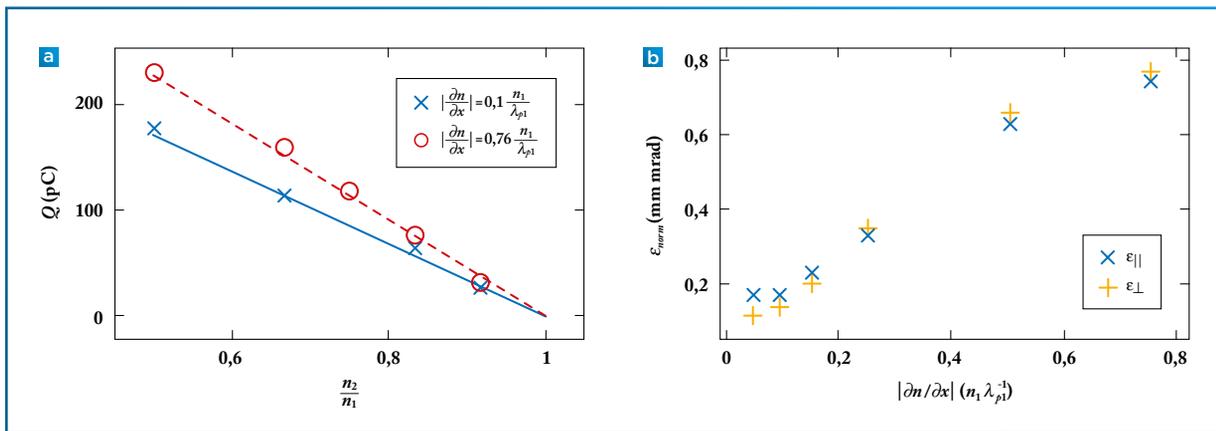


Figure 1
➔ Principe de l'injection d'électrons par gradient de densité. Profil de densité électronique n_e (courbe noire) traversé par le laser et distribution des électrons dQ/dE (carte de couleur) en fonction de la position x du faisceau dans le plasma et de l'énergie cinétique E des électrons. Le gradient descendant entre les régions I et II (respectivement de densité n_1 et n_2) provoque l'injection d'électrons, qui sont ensuite accélérés à haute énergie lors de la traversée de la région II.

Figure 2

➔ (a) Évolution de la charge électronique injectée en fonction du saut de densité n_2/n_1 , pour deux valeurs différentes de la pente $\partial n/\partial x$ du gradient. (b) Évolution de l'émittance transverse du faisceau en fonction de la pente $\partial n/\partial x$ du gradient, avec $\epsilon_{||}$ et ϵ_{\perp} les émittances parallèle et perpendiculaire à la polarisation du laser ; λ_{p1} correspond à la longueur d'onde du sillage dans la région I de densité n_1 (voir figure 1).



nécessitent de plus de pouvoir optimiser un nombre croissant de propriétés du faisceau. Notre travail a montré **1** que l'adaptation de cette méthode d'injection par gradient est un moyen d'atteindre cet objectif.

La structure plasma accélératrice, c'est-à-dire l'onde de sillage, se propage à la même vitesse que le faisceau laser qui la génère. Avant de pouvoir être accéléré à haute énergie, un faisceau d'électrons doit d'abord être injecté dans cette structure accélératrice, c'est-à-dire atteindre la vitesse de l'onde afin de rester à l'intérieur de celle-ci. Ce processus d'injection est similaire à celui qui consiste à prendre un train en marche : plus le train est rapide et plus il est difficile d'y monter. Or, dans les plasmas peu denses considérés ici, le laser est ralenti par le plasma, mais il se propage tout de même à une vitesse proche de celle de la lumière dans le vide. Le faisceau d'électrons doit donc atteindre une vitesse relativiste avant de pouvoir être injecté puis accéléré à haute énergie par l'onde de sillage. Cette condition n'est pas triviale à remplir, car c'est une fraction des électrons du plasma, initialement au repos, qui doit être ainsi préaccélérée. Les électrons du plasma sont naturellement accélérés lors de leur courte interaction avec le faisceau laser et avec l'avant de l'onde de sillage, mais bien souvent, cette accélération n'est pas suffisante pour

provoquer l'injection. Cependant, dans l'image du train, si celui-ci ralentit fortement, alors il est plus facile d'y monter, même en courant moins vite. L'utilisation d'un gradient de densité (figure 1) suit ce principe : faire ralentir l'onde plasma afin de faciliter l'injection d'électrons en son sein. Ce ralentissement est dû à la modification de la longueur d'onde de l'onde de sillage lorsque la densité du plasma décroît. Il provoque l'injection d'une manière localisée et contrôlée, comme on peut le vérifier sur la figure 1 : les électrons énergétiques en fin d'accélération ($E > 150$ MeV) sont issus de la petite zone où se trouve le gradient.

Divers procédés expérimentaux permettent déjà de créer des profils plasma présentant un gradient, tout en contrôlant partiellement certaines propriétés, comme la longueur et la pente.

Cependant, il existe encore peu d'études sur la conséquence d'une variation des propriétés du gradient sur les faisceaux accélérés. Des simulations réalisées avec le code Calder-Circ ont montré qu'un grand nombre de caractéristiques du faisceau pouvaient être ajustées et contrôlées en choisissant correctement ces valeurs. En particulier, la charge et la durée du faisceau augmentent avec l'amplitude du saut de densité induit par le gradient, et son émittance transverse – qui quantifie la qualité de la distribution transverse du faisceau – se dégrade (car elle augmente) avec la pente, comme le montre la figure 2. La qualité spectrale dépend de manière plus complexe des différentes propriétés du gradient.

Ces résultats seront très utiles pour la conception et la compréhension de futures expériences d'accélération d'électrons par laser.

RÉFÉRENCES

- 1** H. EKERFELT, M. HANSSON, I. GALLARDO GONZÁLEZ, X. DAVOINE, O. LUNDH, "A tunable electron beam source using trapping of electrons in a density down-ramp in laser wakefield acceleration", *Sci. Reports*, **7**, 12229 (2017).
- 2** S. BULANOV *et al.*, "Particle injection into the wave acceleration phase due to nonlinear wake wave breaking", *Phys. Rev. E*, **58**, R5257 (1998).

E. Pellereau, J. Taieb, A. Chatillon,
G. Béliier, G. Boutoux, A. Ebran,
T. Gorbinet, L. Grente, B. Laurent,
J.-F. Martin
CEA – DAM Île-de-France

En collaboration avec des chercheurs de l'université de Saint-Jacques-de-Compostelle et de l'université de Vigo (Espagne), de l'université technologique de Chalmers (Suède), du GSI de Darmstadt (Allemagne) et du CNRS (IPN Orsay, GANIL, CENBG).

MESURES DE HAUTE PRÉCISION DE RENDEMENTS DE FISSION NUCLÉAIRE

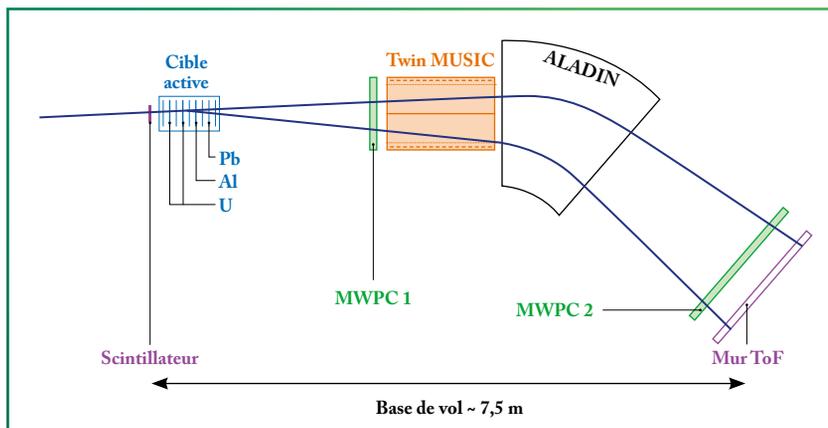
Le projet SOFIA a pour objectif de mesurer des données nucléaires d'importance pour améliorer la simulation de systèmes nucléaires comme les réacteurs de nouvelle génération, et donc pour améliorer leur sécurité. Ces données nucléaires sont complexes à mesurer et SOFIA, avec une importante collaboration internationale (France, Espagne, Allemagne, Suède) et des moyens expérimentaux modernes, a permis d'acquérir un grand volume de données de haute précision.

Le projet SOFIA, pour Studies On FISSION with Aladin, utilise un dispositif expérimental moderne, développé pour mesurer, en premier lieu, les rendements de fission, c'est-à-dire la proportion de chaque espèce de fragments produits par la réaction de fission. Dans ce contexte, un spectromètre a été spécialement conçu pour s'adapter aux faisceaux d'ions lourds relativistes produits sur la très grande installation du laboratoire GSI de Darmstadt en Allemagne. Dans cette approche expérimentale du phénomène, le noyau dont on souhaite étudier la fission est accéléré à des vitesses relativistes (environ 80% de la vitesse de la lumière) et envoyé sur une cible de plomb ou d'uranium. Le noyau incident acquiert de l'énergie d'excitation dans le champ coulombien du noyau cible, conduisant finalement à sa fis-

sion. Le dispositif permet de sélectionner ce mécanisme de réaction de fission induite par excitation coulombienne, qui présente deux avantages majeurs par rapport aux méthodes classiques : d'une part, la fission d'un grand nombre d'isotopes peut être étudiée, d'autre part la détermination des rendements de fission est très précise car une grande statistique peut être accumulée rapidement. De plus, cette méthode permet de s'affranchir de la difficulté, voire de l'impossibilité dans certains cas, de fabriquer des cibles sans lesquelles les méthodes classiques sont inopérantes.

Une cinquantaine de noyaux, du mercure au neptunium, ont été étudiés. Un effort particulier a été fourni pour obtenir des données de haute précision sur les isotopes de l'uranium. Le dispositif expérimental est schématisé sur la **figure 1**. Le

Figure 1
 ➤ Schéma de principe du dispositif expérimental utilisé pour l'identification en charge et en masse des deux fragments de fission. Le faisceau de noyaux dont on veut étudier la fission est conduit sur la cible active. La fission est induite dans la cible active et les deux fragments produits sont mesurés par la double chambre à ionisation Twin MUSIC, par des détecteurs de localisation MWPC avant et après déflexion par l'aimant de très grande taille ALADIN et par le dispositif de temps de vol constitué par le scintillateur devant la cible active et le mur ToF.



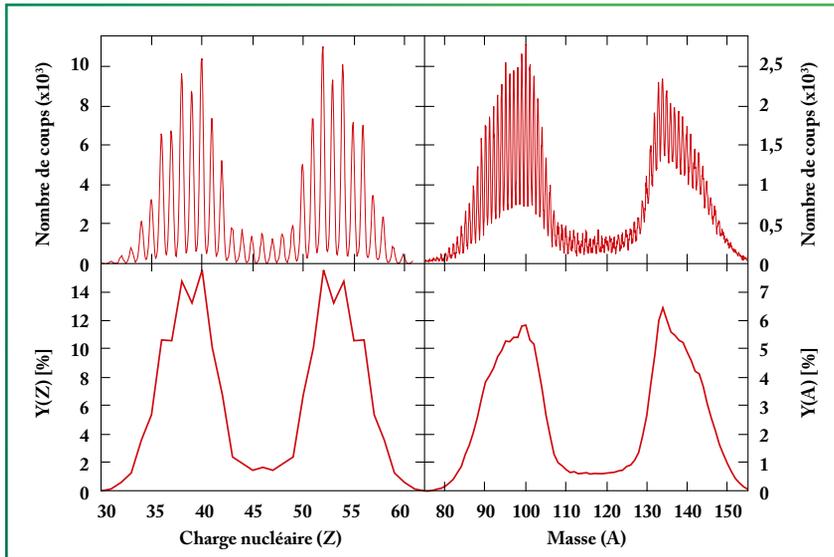


Figure 2

➡ Distributions (en haut) et rendements Y (en bas) en charge Z (à gauche) et en masse A (à droite), mesurés pour la fission de l'uranium 238. Cette technique permet d'identifier, de manière univoque et pour la première fois, la charge Z et la masse A de chaque fragment de fission, autrement dit le nombre de protons et le nombre de neutrons.

faisceau interagit avec une cible; lorsqu'une réaction de fission se produit, les deux fragments sont émis vers l'avant grâce à la très grande énergie cinétique incidente. L'ensemble des détecteurs est dimensionné pour collecter la quasi-totalité des fragments de fission, ce qui explique la grande statistique qui peut être accumulée en quelques heures. Ce dispositif permet de mesurer, pour chacun des deux fragments, trois observables: la perte d'énergie, le temps de vol et la trajectoire dans un champ magnétique. Ces informations suffisent à obtenir, pour un noyau fissionnant, l'identification isotopique des deux fragments, c'est-à-dire la charge nucléaire Z et la masse A de chaque fragment, autrement dit son nombre de protons (Z) et de neutrons ($N = A - Z$).

Les distributions et rendements en charge $Y(Z)$ et en masse $Y(A)$ obtenus pour la fission de l'isotope 238 de l'uranium **1** sont représentés sur la **figure 2**. Pour la première fois, une séparation a été obtenue entre les différentes charges nucléaires Z et entre les différentes masses A . De ce fait, les rendements ont pu être obtenus avec de faibles incertitudes (inférieures à l'épaisseur du trait sur la **figure 2**). Les rendements isotopiques $Y(Z,N)$ ont également été obtenus pour tous les fragments de fission ayant une charge nucléaire comprise entre $Z = 30$ et $Z = 59$; ces rendements isotopiques donnent la probabilité pour qu'un isotope particulier soit produit.

Obtenir cet ensemble de résultats avec une telle précision a un impact significatif pour les applications. En particulier, la connaissance des rendements de production permet une amélioration de la prédiction de l'accumulation des produits de fission

de vie longue, du flux de neutrons ou de la chaleur résiduelle suite à l'arrêt d'un réacteur nucléaire. Un exemple est donné sur la **figure 3** pour les isotopes d'indium ($Z = 49$) et d'étain ($Z = 50$).

Cette **figure 3** montre également qu'avec ces mesures une compréhension plus profonde du phénomène de fission peut également être atteinte. En effet, pour les fragments qui ne sont pourtant pas majoritairement produits, la décomposition en différents modes de fission peut être quantifiée. La fission est dite symétrique lorsque les deux fragments sont produits avec une masse ou une charge voisine, elle est dite asymétrique dans le cas contraire. La tran-

sition entre deux modes très différents de fission, symétrique et asymétrique, est nettement mise en évidence entre $Z = 49$ et $Z = 50$.

La fission d'autres noyaux a été étudiée avec une forte statistique, notamment celle des isotopes 234, 235 et 236 de l'uranium. L'ensemble des résultats obtenus avec l'expérience SOFIA donnera l'évolution des rendements avec la masse du noyau fissionnant. De plus, en comparant les résultats avec les mesures classiques de fission induite par des neutrons de différentes énergies, lorsqu'elles existent, une interprétation plus fine de l'effet de l'énergie d'excitation sur la fission est accessible, du fait de la haute précision des données.

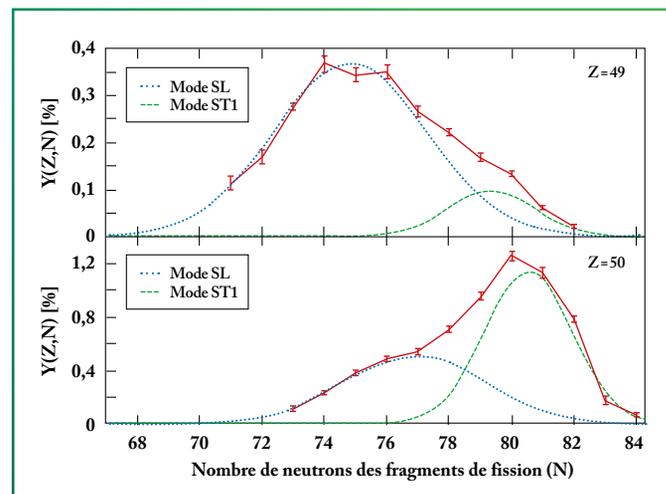


Figure 3

➡ Rendement isotopique $Y(Z,N)$ en fonction du nombre N de neutrons ($N = A - Z$) pour les fragments de charge $Z = 49$ (indium) et $Z = 50$ (zinc). La précision des rendements isotopiques (rouge) permet de distinguer les différents modes de fission: la queue du mode symétrique en bleu, et le mode dit asymétrique en vert, modes dont le poids respectif change drastiquement au passage de $Z = 49$ à $Z = 50$.

RÉFÉRENCES

1 E. PELLEREAU *et al.*, "Accurate isotopic fission yields of electromagnetically induced fission of ^{238}U measured in inverse kinematics at relativistic energies", *Phys. Rev. C*, **95**, 054603 (2017).

DÉCOUVERTE DU SUPERHYDRURE FeH_5 : LA NOUVELLE CHIMIE DES HYDRURES SOUS TRÈS HAUTE PRESSION

Au cours de ces dix dernières années, de nombreux calculs ont prédit une nouvelle chimie de l'hydrogène avec les métaux. Sous des pressions d'hydrogène de l'ordre de 100 GPa, la plupart des métaux pourraient former des composés avec des stœchiométries en hydrogène très riches, appelés superhydrures. L'étude du système Fe/H sous pression a permis de découvrir le premier superhydrure ne contenant que de l'hydrogène atomique, de formule FeH_5 . Sa structure, formée de couches d'hydrogène atomique, est remarquable. Ces superhydrures pourraient permettre d'observer quelques-unes des propriétés remarquables de l'hydrogène métallique à des pressions qui peuvent être atteintes actuellement, comme une supraconductivité à haute température critique.

L'étude de nouveaux composés obtenus par l'action de l'hydrogène sur les métaux sous très fortes pressions est un axe de recherche qui connaît actuellement un essor considérable. Jusqu'à présent, la plupart des travaux étaient théoriques, mais les premiers résultats expérimentaux récemment obtenus confirment la richesse de cette ligne de recherche. La pression devrait accroître considérablement la solubilité de l'hydrogène. Ainsi, des composés extrêmement riches en hydrogène devraient apparaître sous pression. Ces systèmes sont aujourd'hui dénommés polyhydrures ou superhydrures, car ils contiennent davantage d'hydrogène que les règles de valence ne le laissent présager. De nombreux superhydrures ont ainsi été prédits, tels LiH_6 **1**, YH_6 ou encore LaH_{10} **2**. Sous pression, ces systèmes pourraient présenter certaines propriétés remarquables attendues dans le cas de l'hydrogène métallique et liées à la faible masse du noyau d'hydrogène, comme une supraconductivité à haute température critique. Un tel comportement n'est cependant pas attendu pour l'hydrogène pur en dessous d'une pression colossale d'au moins 450 GPa (pression prédite de sa métallisation), tandis que de nombreux superhydrures devraient présenter une supraconductivité à haute température pour des pressions de l'ordre de la centaine de gigapascals, donc plus facilement accessibles en laboratoire au

moyen de cellules à enclumes de diamant, un dispositif expérimental comportant deux diamants opposés entre lesquels un échantillon micrométrique peut être soumis à des pressions et températures extrêmes ($P \leq 400$ GPa, $T \leq 7000$ K).

Ces prédictions théoriques ont trouvé une première confirmation remarquable il y a deux ans, lorsqu'une équipe allemande a détecté un état supraconducteur dans le composé H_3S sous pression **3**, avec la température critique la plus élevée jamais mesurée ($T_c = 203$ K à 150 GPa). Précisons qu'il s'agit *a priori* d'une supraconductivité conventionnelle, c'est-à-dire dont l'origine se trouve dans l'appariement des électrons par le biais de leur interaction avec les phonons. En parallèle, notre équipe a démontré la très forte augmentation de la solubilité de l'hydrogène dans les métaux, avec la synthèse de LiH_6 **4**, ou encore de FeH_3 **5**. Dans le travail présenté ici **6**, le composé FeH_5 a été synthétisé et sa structure déterminée. Il s'agit d'un record de stœchiométrie en hydrogène pour un métal de transition, et un record de stœchiométrie en hydrogène atomique pour un métal dans le cas général.

Cette découverte fait suite à un précédent travail, dans lequel la série des premiers hydrures de fer sous pression a été étudiée, et l'existence de FeH_2 et FeH_3 a été démontrée **5**. La synthèse avait été réalisée en mettant en contact du fer avec

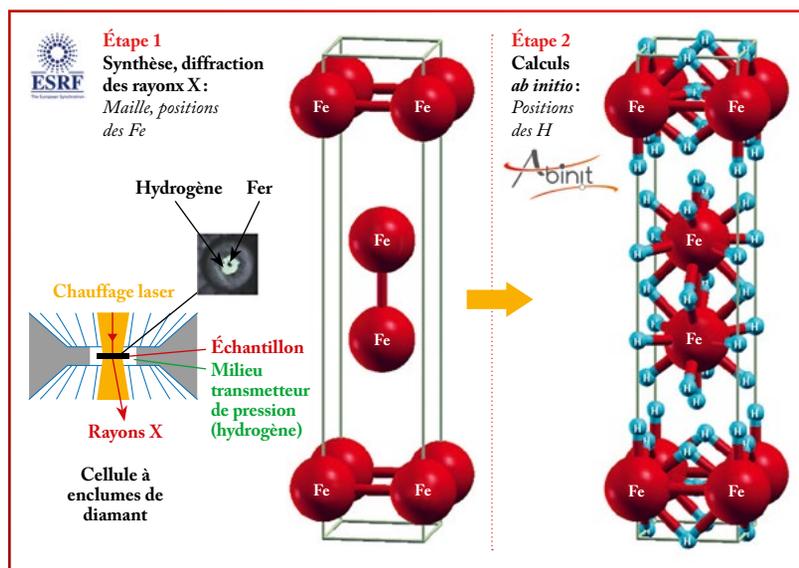


Figure 1

➔ Synthèse et détermination de la structure de FeH_5 . Étape 1: synthèse en cellule à enclumes de diamant et diffraction des rayons X permettant l'obtention de la maille, du groupe d'espace et des positions des atomes de Fe. Étape 2: obtention de la position des atomes d'hydrogène par calculs *ab initio*.

de l'hydrogène en excès, dans une cellule à enclumes de diamant chauffée par laser infrarouge. Les produits de réaction avaient été caractérisés *in situ* par diffraction de rayons X sur synchrotron. En utilisant les mêmes techniques, une autre phase a été obtenue à 130 GPa, dont une partie de la structure (groupe d'espace, positions des atomes de fer, paramètres de maille) a pu être déterminée grâce à la diffraction des rayons X (figure 1). Les atomes d'hydrogène, quant à eux, sont quasiment invisibles aux rayons X, mais le volume mesuré laissait à penser que le composé pouvait être de stœchiométrie FeH_5 . Afin de trouver le nombre d'atomes d'hydrogène dans la maille, ainsi que leurs positions, des calculs *ab initio* ont été effectués avec le code Abinit [7], ce qui a permis d'élucider totalement la structure et de confirmer qu'il s'agissait bien de FeH_5 .

La structure de cet hydrure n'était pas prédite auparavant. Elle est remarquable: c'est une structure en couches, qui contient une très grande quantité d'hydrogène dans les interstices séparant deux couches consécutives. Ces couches – dont la structure est analogue à celle de FeH_3 – ne sont pas liées chimiquement entre elles: c'est la pression qui maintient la cohésion du système dans la direction perpendiculaire. De plus, l'hydrogène est sous forme atomique, alors qu'à cette pression, l'hydrogène pur est sous forme moléculaire (H_2), laissant suggérer des similarités avec l'hydrogène métallique, qui possède une structure atomique. Chaque atome de fer est entouré de 13 atomes d'hydrogène. Par ailleurs, FeH_5 présente les caractères d'un système bidimensionnel quant à sa structure électro-

nique, notamment par l'existence d'un gap sur quasiment toute la zone de Brillouin, et qui ne se referme qu'en certains points, en bord de zone, une caractéristique qui rappelle des composés de Van der Waals 2D comme le graphite. Notons que la structure de FeH_5 a ensuite été confirmée par une autre étude [8].

Par ailleurs, les hydrures sous pression présentent des stœchiométries « magiques »: certaines apparaissent, d'autres non. Ainsi, FeH_4 n'est jamais stable et n'apparaît pas. La découverte de FeH_5 a immédiatement suscité des travaux de la part d'autres équipes. La supraconductivité dans ce composé a ainsi été calculée, et prédite avec une tem-

pérature critique autour de 40-50 K [8,9].

Cette étude constitue une preuve indiscutable de l'existence des superhydrures. L'étape suivante, sur laquelle notre équipe travaille, est de caractériser les propriétés de supraconductivité de ces systèmes. La mise en place d'une stratégie de recherche basée sur des hydrures ternaires (deux métaux + l'hydrogène), que l'on essaierait de ramener à pression ambiante sous une forme métastable, pourrait ouvrir la voie à des supraconducteurs à haute température critique à des pressions proches de l'ambiante, ou à la synthèse de matériaux prometteurs pour le stockage de l'hydrogène.

RÉFÉRENCES

- 1 E. ZUREK *et al.*, "A little bit of lithium does a lot for hydrogen", *P. Natl. Acad. Sci. USA*, **106**, p. 17640-17643 (2009).
- 2 H. LIU *et al.*, "Potential high- T_c superconducting lanthanum and yttrium hydrides at high pressure", *P. Natl. Acad. Sci. USA*, **114**, p. 6990-6995 (2017).
- 3 A. P. DROZDOV *et al.*, "Conventional superconductivity at 203 kelvin at high pressures in the sulfur hydride system", *Nature*, **525**, p. 73-76 (2015).
- 4 C. M. PÉPIN *et al.*, "Synthesis of lithium polyhydrides above 130 GPa at 300 K", *P. Natl. Acad. Sci. USA*, **112**, p. 7673-7676 (2015).
- 5 C. M. PÉPIN *et al.*, "New iron hydrides under high pressure", *Phys. Rev. Lett.*, **113**, 265504 (2014).
- 6 C. M. PÉPIN *et al.*, "Synthesis of FeH_5 : A layered structure with atomic hydrogen slabs", *Science*, **357**, p. 382-385 (2017).
- 7 X. GONZE *et al.*, "Recent developments in the ABINIT software package", *Comput. Phys. Commun.*, **205**, p. 106-131 (2016).
- 8 A. G. KVASHNIN *et al.*, "Iron superhydrides FeH_5 and FeH_6 : Stability, electronic properties and superconductivity", *J. Phys. Chem. C*, **122**, p. 4731-4736 (2018).
- 9 A. MAJUMDAR *et al.*, "Superconductivity in FeH_5 ", *Phys. Rev. B*, **96**, 201107(R) (2017).

UNE PREMIÈRE DANS LA MODÉLISATION DU PLUTONIUM À HAUTE TEMPÉRATURE

Des simulations de dynamique moléculaire *ab initio* ont été effectuées afin d'étudier la stabilité des phases delta et epsilon du plutonium à haute température. Pour cela, plusieurs simulations ont été réalisées entre 300 K et 1 200 K, et les fréquences de vibration des atomes de plutonium ont été analysées dans les deux phases cristallines. Il a ainsi été montré que la phase epsilon peut être stabilisée à condition de prendre en compte simultanément la température et le caractère corrélé des électrons des atomes de plutonium. Les calculs montrent par ailleurs que les fréquences de vibration des atomes dans la phase epsilon varient significativement avec la température, contrairement à la phase delta.

Le plutonium est un élément de la série des actinides dont la radioactivité rend les expériences à haute température difficiles à réaliser. Par conséquent, la modélisation atomistique apparaît comme un outil pertinent pour étudier les phénomènes dépendant de la température, en particulier la description du diagramme de phase. Cependant, d'un point de vue théorique, la modélisation du diagramme de phase du plutonium par les méthodes dites *ab initio* représente encore aujourd'hui un important défi. D'une part, le plutonium cristallise sous six différentes phases allotropiques à pression ambiante; d'autre part, chacune de ces phases constitue un défi pour les méthodes *ab initio*, la phase delta (cubique face centrée) étant une parfaite illustration des difficultés que les scientifiques ont rencontrées. Il aura en effet fallu plus de quarante années de travaux théoriques, couplés à des recherches expérimentales, pour révéler les mécanismes électroniques opérant dans cette phase du plutonium **1**.

Bien que le paramètre clé pour la modélisation du diagramme de phase du plutonium soit la température, toutes les études *ab initio* internationales qui se sont penchées sur la description du plutonium ont, jusqu'à ce jour, été effectuées à des températures nulles, principalement en raison des limitations liées aux ressources informatiques. Pour inclure les effets de tem-

pérature, il est nécessaire de déterminer les propriétés vibrationnelles du matériau *via* un spectre de phonons qui indique les fréquences de vibration des atomes en différents points de l'espace. L'analyse de ces fréquences donne en retour les informations quantitatives nécessaires à la réalisation du diagramme de phase.

Afin de calculer les fréquences de vibration, le code de structure électronique Abinit **2**, codéveloppé au CEA – DAM Île-de-France, a été utilisé sur le supercalculateur Tera 1000, fournissant ainsi la puissance de calcul nécessaire à de telles simulations, dans lesquelles les deux effets physiques les plus importants ont été pris en compte: (i) la température dans l'approche dite TDEP (Temperature Dependent Effective Potential), développée par O. Hellman **3**, et (ii) le fait que les électrons des atomes de plutonium sont fortement localisés autour des noyaux atomiques, leur valant la qualification d'électrons corrélés, qui nécessite des méthodes de résolution adaptées **4, 5**. Dans l'approche TDEP, les fréquences de vibration sont calculées en diagonalisant la matrice dynamique qui relie les forces et les positions atomiques acquises au cours d'une simulation.

Sur la **figure 1** sont respectivement représentés les spectres de phonons des phases delta, stable entre 580 et 730 K, et epsilon, stable entre 730 K et 900 K, pour

trois températures. Les axes des abscisses et des ordonnées représentent respectivement les directions spatiales dans le cristal et les fréquences de vibration associées en térahertz (1 THz = 10^{12} Hz). Pour une phase et une température données, les différentes courbes sont appelées modes de vibration du cristal : à l’instar du son et de la lumière, les vibrations du cristal sont une superposition d’ondes de différentes fréquences (ou longueurs d’onde). On notera que certaines des simulations ont été effectuées à des températures hors de la zone de

stabilité des phases – la phase étant maintenue – dans le but de mieux appréhender la variation des spectres de phonons. Plusieurs points sont en effet nécessaires pour caractériser ces évolutions.

La **figure 1a** indique ainsi que le spectre de la phase delta ne change pas de manière significative en fonction de la température : le cristal est dit harmonique, et ce, jusqu’à des températures d’au moins 1000 K. On constate aussi que toutes les fréquences de la phase delta sont positives, traduisant la stabilité dynamique du cristal.

En revanche, en ce qui concerne la phase epsilon (**figure 1b**), certaines fréquences de vibration sont négatives dans la direction Γ -N à 600 K : la phase n’est pas stable dynamiquement. Cependant, la stabilisation est progressive lorsque la température augmente : à 900 K puis à 1200 K, la fréquence du mode augmente jusqu’à devenir positive. Ce spectre de phonons de la phase epsilon est le premier jamais obtenu, que ce soit par des approches théoriques ou expérimentales.

Ces résultats montrent ainsi que la phase epsilon peut être stabilisée dans une simulation de dynamique moléculaire *ab initio*, à condition de prendre en compte conjointement les effets de température et les fortes corrélations électroniques. Une telle stabilisation théorique avait jusqu’à ce jour échappé à toutes les études *ab initio*. De plus, il a été possible de quantifier la dépendance en température des fréquences de vibration des deux phases : si la phase delta est harmonique jusqu’à des températures de 1000 K, les fréquences de vibration de la phase epsilon sont, en revanche, significativement impactées par les effets de température.

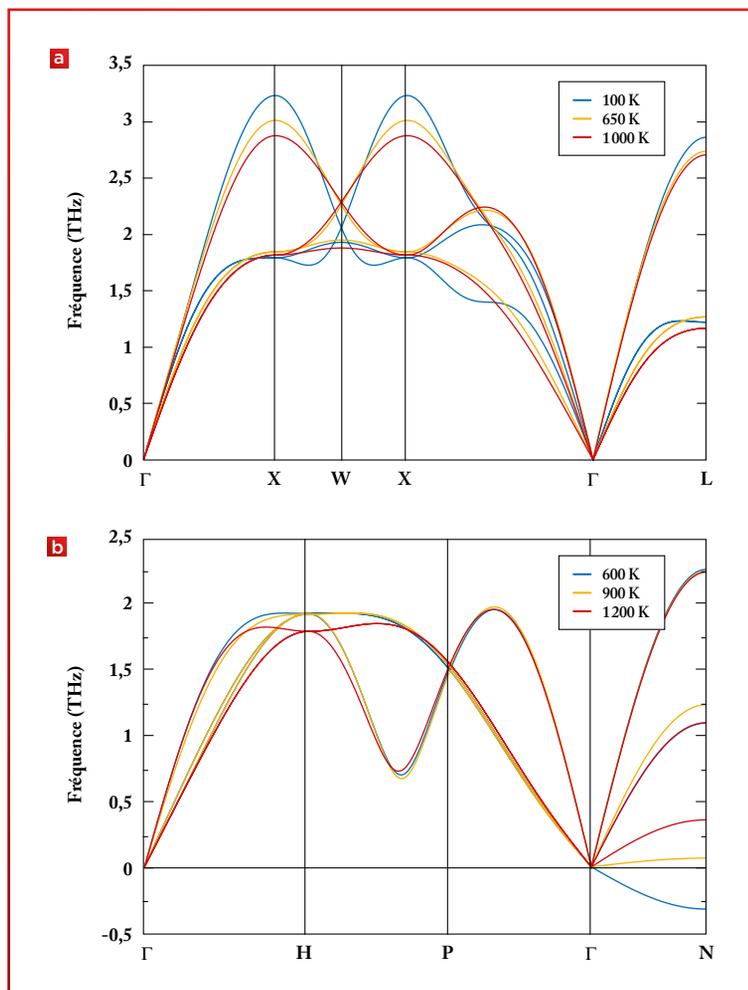


Figure 1

➔ Spectres de phonons (a) de la phase delta et (b) de la phase epsilon du plutonium, obtenus par calcul *ab initio* avec le code Abinit [2] sur le supercalculateur Tera 1000. L’axe des abscisses représente les directions spatiales dans le cristal et l’axe des ordonnées les fréquences de vibration en THz. Pour une température et une phase données, les différentes courbes représentent les modes de vibration du cristal. Le spectre de la phase delta indique une phase stable (pas de fréquences négatives) et n’évolue pas significativement en fonction de la température, contrairement à celui de la phase epsilon, dont la stabilisation est progressive dans la direction Γ -N.

RÉFÉRENCES

- 1 M. JANOSCHECK *et al.*, “The valence-fluctuating ground state of plutonium”, *Sci. Adv.*, **1**, e1500188 (2015).
- 2 X. GONZE *et al.*, “Recent developments in the Abinit software package”, *Comput. Phys. Commun.*, **205**, p. 106-131 (2016).
- 3 O. HELLMAN *et al.*, “Temperature dependent effective potential method for accurate free energy calculations of solids”, *Phys. Rev. B*, **87**, 104111 (2013).
- 4 B. DORADO *et al.*, “Advances in first-principles modelling of point defects in UO_2 : f electron correlations and the issue of local energy minima”, *J. Phys.: Condens. Matter*, **25**, 333201 (2013).
- 5 B. DORADO *et al.*, “Phonon spectra of plutonium at high temperatures”, *Phys. Rev. B*, **95**, 104303 (2017).

SIMULATION DE L'ÉJECTION DE MATIÈRE SOUS CHOC PAR APPROCHES CONTINUE ET ATOMISTIQUE

L'éjection de matière produite par l'interaction d'une onde de choc avec les défauts de surface d'un métal est un phénomène difficile à simuler pour les codes hydrodynamiques (approche continue), car les effets mis en jeu (tension de surface, viscosité, mécanisme de fragmentation, etc.) sont rarement tous pris en compte dans la modélisation. Le défi a été relevé par le CEA – DAM, qui a réalisé très récemment un développement majeur du code hydrodynamique Hera. Cet outil a été testé et validé en comparant, à la même échelle, des simulations d'éjection issues de Hera à des simulations par dynamique moléculaire effectuées avec le code ExaStamp (approche atomistique). Ces dernières, qui décrivent les mouvements relatifs d'atomes en interaction mutuelle, fournissent des solutions de référence. Les simulations issues des deux approches sont en très bon accord; elles bénéficient pleinement des capacités des supercalculateurs du CEA – DAM.

Lorsqu'une onde de choc traverse un matériau métallique et interagit avec les défauts géométriques de sa surface, des instabilités de matière, dites de Richtmyer-Meshkov, peuvent se développer. Dans le cas particulier où le matériau fond directement sous choc ou en détente, les instabilités finissent par se fragmenter pour former un nuage de particules de différentes tailles, éjectées à très grandes vitesses. Ce phénomène peut être une source d'inhibition pour des applications comme la fusion par confinement inertiel.

La fragmentation des instabilités de Richtmyer-Meshkov est un processus difficile à simuler pour les codes hydrodynamiques traitant la physique des chocs (fluides compressibles), car il fait intervenir la tension de surface qui a une grande influence sur la courbure des fluides, et donc sur le calcul du positionnement relatif des interfaces. Récemment, un modèle de calcul de tension de surface basé sur la méthode dite CSF **1**, pour *Continuum surface force*, a été implanté dans le code d'hydrodynamique eulérienne multimatériaux Hera développé au CEA – DAM. Ce code repose sur une plateforme basée sur un raffinement adaptatif de maillage adapté aux supercalculateurs de la DAM **2**.

Afin de tester ce code, des simulations d'éjection de matière réalisées avec Hera ont été comparées à des simulations par dynamique moléculaire **3**. L'étude de l'éjection de matière sous choc par dynamique molé-

culaire est une approche originale, également développée depuis quelques années au CEA – DAM et qui a montré sa capacité à capter à la fois les aspects continus et les mécanismes de fragmentation des instabilités de Richtmyer-Meshkov **4**. Son principal avantage réside dans le fait que les effets de tension de surface et de viscosité sont pris en compte de manière intrinsèque par le potentiel utilisé pour décrire les interactions entre atomes; elle permet aussi de s'affranchir de tout effet de maillage. Ainsi, la dynamique moléculaire contient toute la physique nécessaire à la

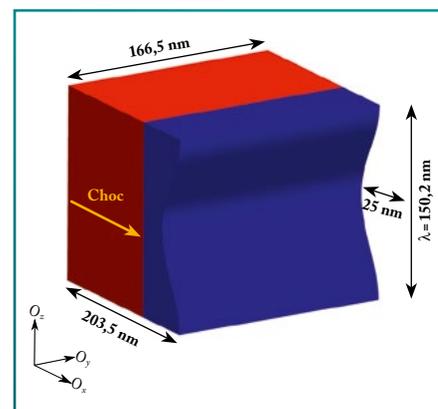


Figure 1

➔ Exemple de géométrie testée pour simuler l'éjection de matière avec les codes hydrodynamique Hera et de dynamique moléculaire ExaStamp. L'étain sous choc est représenté en rouge et l'étain non choqué en bleu. Le choc, d'environ 65 GPa, se propage de la gauche vers la droite selon l'axe O_x , et l'étain est au contact du vide.

description de l'éjection, et les simulations fournissent des solutions de référence pour un code hydrodynamique. L'inconvénient majeur provient du fait que les simulations sont limitées à des tailles d'échantillon de dimensions nanométriques. Un code tel que Hera est donc nécessaire pour passer à plus grande échelle.

Les simulations par dynamique moléculaire sont réalisées au moyen du code ExaStamp, développé au CEA – DAM, qui répond aux exigences des nouveaux supercalculateurs de la DAM. Il est capable d'effectuer des simulations avec des potentiels coûteux sur des systèmes contenant plusieurs centaines de millions d'atomes. Il bénéficie d'une programmation orientée objet lui permettant de masquer la complexité introduite par de multiples niveaux de parallélisme.

Afin de rendre cohérentes les comparaisons entre codes, l'équation d'état du métal considéré ainsi que les valeurs de tension de surface et de viscosité utilisées dans Hera ont été obtenues à partir du potentiel interatomique utilisé dans ExaStamp. Ce dernier a lui-même été calé sur des données thermodynamiques expérimentales pertinentes. Par ailleurs, les simulations ont été réalisées sur des échantillons de mêmes dimensions.

Un exemple d'échantillon testé est décrit sur la **figure 1**. Un cristal d'étain, de dimensions 203,5 nm × 166,5 nm × 150,2 nm est mis au contact du vide. Il présente une rugosité de surface sinusoidale de longueur d'onde $\lambda = 150,2$ nm et de profondeur 25 nm. Il est soumis à un choc d'environ 65 GPa se propageant selon la direction O_x et faisant passer l'étain directement d'un état solide à un état liquide sous choc. Pour les simulations par dynamique moléculaire, ce cristal contient environ 200 millions d'atomes, et pour les simulations avec Hera, l'étain est discrétisé au niveau le plus fin avec 160 mailles par longueur d'onde λ , le vide étant plus grossièrement maillé (20 mailles/ λ).

La **figure 2a** compare, sur des vues obliques, environ 900 ps après le début de l'éjection, les instabilités de Richtmyer-Meshkov, ici sous forme de nappes de métal bidimensionnelles, simulées avec Hera et ExaStamp. Ces vues sont ensuite superposées en coupe sur la **figure 2b**. La tête de nappe de forme cylindrique, simulée par Hera, coïncide parfaitement avec celle de la référence calculée en dynamique moléculaire, ce qui est très satisfaisant, car cette forme dépend très fortement de la tension de surface du métal.

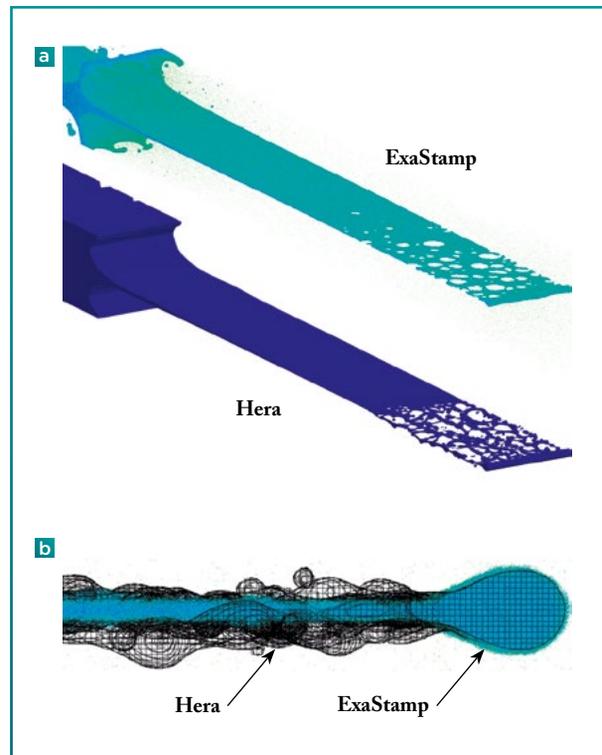


Figure 2

→ (a) Comparaison et (b) superposition des nappes de métal liquide éjectées issues des simulations numériques, réalisées avec le code de dynamique moléculaire ExaStamp et avec le code hydrodynamique Hera, 900 ps après le début de l'éjection. Sur la **figure 2b**, la simulation obtenue avec Hera est représentée avec le maillage visible (en noir) afin de distinguer des simulations par dynamique moléculaire (en bleu). Les formes de la tête de nappe calculées avec Hera et ExaStamp coïncident parfaitement. L'évolution des nappes à des instants ultérieurs montre une phénoménologie de fragmentation similaire dans les deux cas : nucléation aléatoire puis croissance et coalescence de trous dans les nappes. Cependant, les germes de fragmentation sont différents : avec Hera, la fragmentation est d'origine numérique, alors qu'avec ExaStamp elle a une origine physique (agitation thermique des atomes), ce qui explique la différence visible à cet instant à l'arrière de la tête de nappe.

faisant, car cette forme dépend très fortement de la tension de surface du métal.

Une étude détaillée du processus de fragmentation des nappes **3** montre également que les deux codes décrivent une phénoménologie de fragmentation similaire bien que les germes de fragmentation soient différents : nucléation aléatoire puis croissance et coalescence de trous dans les nappes. Avec Hera, la fragmentation est d'origine numérique, alors qu'avec ExaStamp, elle a une origine

physique (agitation thermique des atomes). Cette phénoménologie est identique à celle observée dans les expériences **5** malgré les différences d'échelles mises en jeu.

Le CEA – DAM dispose désormais d'outils de simulation performants basés sur une description continue et atomistique de la matière et permettant de traiter les effets de tension de surface dans la physique des chocs. Peu de laboratoires dans le monde peuvent les maîtriser.

RÉFÉRENCES

- 1** J. U. BRACKBILL, D. B. KOTHE, C. ZEMACH, "A Continuum Method for Modeling Surface Tension", *J. Comput. Phys.*, **100**, p. 335-354 (1992).
- 2** P. BALLEREAU, P. CARRIBAUT, F. DUBOC, D. DUREAU, C. ENAUX, H. JOURDREN, M. PÉRACHE, « Méthodes de raffinement adaptatif de maillage et modèles avancés de programmation pour le calcul haute performance », *Revue chocs*, **41**, p. 81-87 (2012).
- 3** O. DURAND, S. JAOUEN, L. SOULARD, O. HEUZÉ, L. COLOMBET, "Comparative simulations of microjetting using atomistic and continuous approaches in the presence of viscosity and surface tension", *J. Appl. Phys.*, **122**, 135107 (2017).
- 4** O. DURAND, L. SOULARD, "Mass-velocity and size-velocity distributions of ejecta cloud from shock-loaded tin surface using atomistic simulations", *J. Appl. Phys.*, **117**, 165903 (2015).
- 5** D. S. SORENSON *et al.*, "Ejecta Particle-Size Measurements from the Break-Up of Micro-Jets in Vacuum and Helium Gas Using Ultraviolet In-Line Fraunhofer Holography", Los Alamos National Laboratory, Technical Report No. LA-UR-15-25993 (2015).

APPLICATION DU PRINCIPE DE MOINDRE ACTION POUR LA SIMULATION D'ÉCOULEMENTS MULTIPHASIQUES COMPRESSIBLES

En dépit des progrès accumulés depuis plus de soixante ans dans le domaine, les schémas numériques pour la simulation d'écoulements hydrodynamiques présentent des limites : au CEA – DAM, les erreurs numériques sur l'entropie ont été identifiées comme étant l'une des sources premières du manque de robustesse.

L'entropie étant une grandeur thermodynamique qui illustre le caractère irréversible des phénomènes physiques, cela a conduit à réanalyser les schémas historiques encore employés, en particulier ici à la lumière du principe de moindre action **1**. Les résultats, très encourageants, conduisent parfois à des algorithmes contre-intuitifs.

Dès les premières études d'armes à Los Alamos en 1944, il est apparu que l'hydrodynamique des matériaux sous haute pression et haute température était un élément critique : il a fallu toute la perspicacité de von Neumann et Richtmyer pour mettre au point les premières simulations à l'aide d'un schéma numérique publié en 1950 **2**. Aujourd'hui, les calculs d'hydrodynamique présentent encore des difficultés. Celles-ci concernent essentiellement l'intégration simultanée de chocs souvent forts et du transport, sur de grandes distances, de fluides d'équations d'état contrastées qui subissent des phases d'évolution isentropes, c'est-à-dire à entropie constante. La contrainte d'isentropie est sans doute l'une des plus fortes, car elle représente l'horizon physiquement admissible qu'impose le second principe de la thermodynamique : en l'absence de tout phénomène dissipatif, un système peut être ramené à son état initial sans dépense d'énergie. Une simulation isentropes revient à suivre cet horizon au plus près, mais les erreurs numériques, toujours présentes, conduisent à le franchir parfois, avec des conséquences d'instabilité et de manque de robustesse des calculs.

Dans la plupart des schémas de calcul modernes **3**, la contrainte isentropie n'est qu'approximativement vérifiée ; cependant, elle l'est d'autant mieux que l'on augmente la précision du schéma (son ordre) et la

résolution des maillages. Pour autant, l'ordre et la résolution finie ne permettent pas de garantir un comportement isentropes stable et rendent ardu le traitement des écoulements multifluides. Dans des travaux antérieurs du CEA – DAM **4**, l'analyse d'un cas test élémentaire mais strictement isentropes, appelé robinet de Ransom, a montré les fragilités de plusieurs de ces schémas usuels.

Cette situation et les évolutions prévues des codes de calcul ont donc motivé une réanalyse des schémas numériques sur la base des principes premiers. L'élément central qui a été dégagé est que le comportement isentropes est géométrique : l'énergie interne d'un système isentropes ne dépend que de la densité qui, elle-même, ne dépend que de la position géométrique des constituants des fluides. Dans ce cas, les équations d'évolution peuvent être construites selon un principe variationnel, dit principe de moindre action. Ce dernier stipule que, pour tout système physique non dissipatif, il existe une fonctionnelle de sa trajectoire, appelée action, dont le minimum fournit la trajectoire physique effective. Ce principe se traduit directement de façon numérique par une simple discrétisation de l'intégrale d'action. Un des avantages majeurs est qu'on ne travaille plus sur des équations différentielles mais sur une forme algébrique,

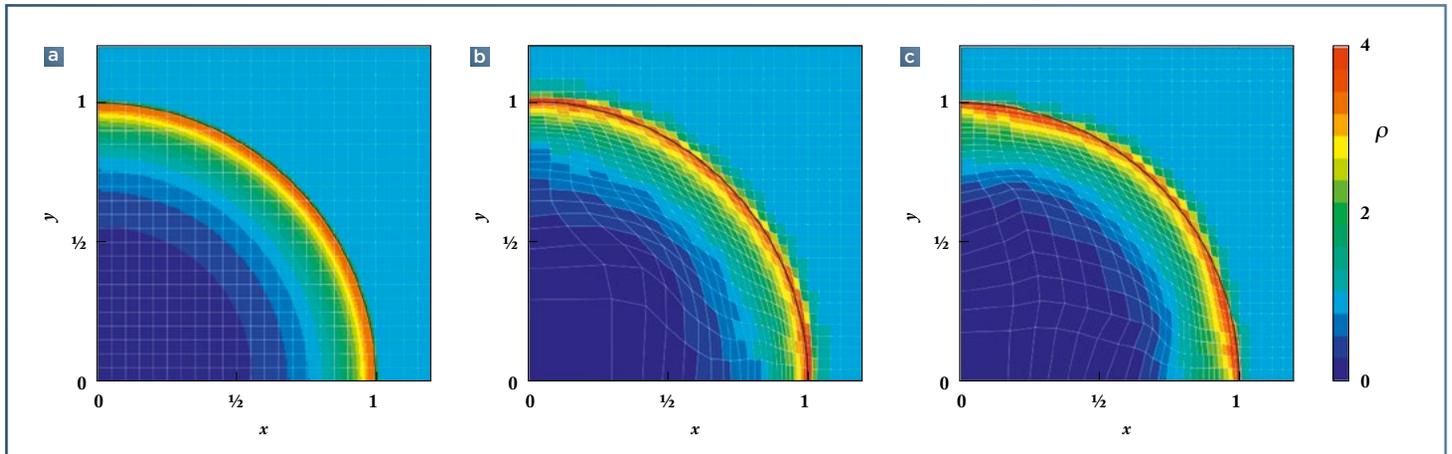


Figure 1

Cartes de densités ρ pour le schéma numérique GEECS (*Geometry, Energy, and Entropy Compatible Scheme*) sur le test de l'explosion de Sedov : un dépôt initial d'énergie interne dans la première maille ($x = y = 0$) crée une onde de choc divergente qui se propage dans un gaz parfait à pression initiale nulle. Trois stratégies de maillage sont représentées : (a) eulérienne, (b) lagrangienne et (c) ALE, pour *Arbitrary Lagrangian-Eulerian*. L'erreur numérique eulérienne est élevée et conduit à employer des maillages fins. Les distorsions de mailles lagrangiennes (à l'origine, c'est-à-dire en bas à gauche) peuvent fragiliser le calcul. La méthode ALE présente donc un compromis satisfaisant entre robustesse et coût de calcul du schéma numérique.

l'intégrale d'action. Ce principe variationnel n'a pas été souvent appliqué à l'hydrodynamique, continue ou discrète, mais il a fait par ailleurs l'objet de très nombreux travaux sur lesquels ce travail s'est appuyé.

Ce travail s'inscrit donc dans une veine plus large où le principe variationnel discret est complété par des contraintes de conservation d'énergie et de positivité des termes dissipatifs : cela constitue la méthode dite GEEC, pour *Geometry, Energy, and Entropy Compatible*. Après une étude préliminaire sur le schéma historique [5] de type lagrangien où le maillage suit la matière, ce travail aborde le cas ALE, pour *Arbitrary Lagrangian-Eulerian*, où le maillage évolue librement selon les prescriptions de l'utilisateur.

Pour notre schéma GEECS, pour GEEC *Scheme*, l'intégrale d'action comporte les termes d'énergie cinétique et interne à l'ordre deux, et un terme de transport par rapport à la grille à l'ordre un. Ce choix est motivé par un besoin de simplicité pour une preuve de concept qui reste néanmoins utilisable lorsque le transport de fluide par rapport au maillage est faible. Il en résulte un algorithme économique et simple, mais comportant une discrétisation du gradient de pression contre-intuitive.

Cet élément est crucial pour assurer les bonnes propriétés entropiques du schéma vérifiées dans des cas tests isentropes.

Le GEECS se comporte de manière satisfaisante et robuste sur l'ensemble des cas tests habituels de la littérature. La figure 1 montre l'explosion de Sedov simulée avec trois stratégies différentes de maillage : Euler, Lagrange et un maillage ALE. Dans ce test, un dépôt initial d'énergie interne dans la première maille crée une onde de choc divergente qui se propage dans un gaz parfait à pression initiale nulle.

Le GEECS permet d'obtenir un résultat stable et robuste, sans déformation critique du maillage, tout en réduisant les erreurs entropiques et en étant moins coûteux en temps de calcul.

Cette nouvelle approche, déjà appliquée aux écoulements multifluides [6] et particules-gaz, sera étendue à d'autres types d'écoulements en collaboration avec des partenaires académiques.

RÉFÉRENCES

- 1 T. VAZQUEZ-GONZALEZ, A. LLOR, C. FOCESATO, "A novel GEEC (Geometry, Energy, and Entropy Compatible) procedure applied to a staggered direct-ALE scheme for hydrodynamics", *Eur. J. Mech. B-Fluids*, **65**, p. 494-515 (2017).
- 2 J. VON NEUMANN, R. D. RICHTMYER, "A method for the numerical calculation of hydrodynamic shocks", *J. Appl. Phys.*, **21**, p. 232-237 (1950).
- 3 B. DESPRÉS, *Numerical Methods for Eulerian and Lagrangian Conservation Laws*, Springer (2017).
- 4 T. VAZQUEZ-GONZALEZ, A. LLOR, C. FOCESATO, "Ransom test results from various two-fluid schemes: Is enforcing hyperbolicity a thermodynamically consistent option?", *Int. J. Multiphase Flow*, **81**, p. 104-112 (2016).
- 5 A. LLOR, A. CLAISSE, C. FOCESATO, "Energy preservation and entropy in Lagrangian space- and time-staggered hydrodynamic schemes", *J. Comput. Phys.*, **309**, p. 324-349 (2016).
- 6 T. VAZQUEZ-GONZALEZ, *Schémas numériques mimétiques et conservatifs pour la simulation d'écoulements multiphasiques compressibles*, Thèse de doctorat de l'université Paris-Saclay, Centrale-Supélec, soutenue le 17 juin 2016.

ÉTUDE D'UN MATÉRIAU COMPOSITE EN CARBONE SOU MIS À UN ENVIRONNEMENT DE RENTRÉE ATMOSPHÉRIQUE

Les composites 3D carbone/carbonate ont une excellente tenue thermostructurale qui leur permet d'être utilisés comme protection thermique dans l'environnement le plus sévère des rentrées atmosphériques, où ils sont soumis au phénomène d'ablation. Les essais en vol étant rares et très coûteux, des essais au sol relativement représentatifs, avec des torches à plasma, sont un bon compromis pour comprendre le comportement du matériau, et notamment l'évolution de son état de surface. Celui-ci pilote en effet l'évolution drastique des flux de chaleur en favorisant le passage d'un écoulement laminaire à la turbulence. L'étude menée a permis de tester un composite 3D carbone/carbonate au Plasmatron de l'Institut von Karman et d'analyser finement sa microstructure de surface afin de comprendre son interaction avec l'écoulement.

La sélection des matériaux de protection thermique et la définition de leur épaisseur sont des paramètres clés pour la conception des corps de rentrée atmosphérique. En conséquence, des efforts d'optimisation sont toujours nécessaires, notamment pour les matériaux les plus performants que sont les composites 3D carbone/carbonate, dont le comportement complexe n'est pas encore totalement modélisé. L'ablation de ce type de composite conduit notamment à l'apparition d'une rugosité de surface, contribuant à la transition laminaire-turbulent, elle-même induisant une multiplication des flux de

chaleur de plus d'un facteur trois **1**. La compréhension de l'interaction fine entre le matériau et son environnement proche nécessite ainsi des avancées; elle s'appuie pour cela sur des essais au sol.

Dans cette étude, des éprouvettes de matériau 3D carbone/carbonate ont été soumises à l'écoulement, représentatif d'une rentrée atmosphérique, produit par une torche à plasma du moyen Plasmatron de l'Institut von Karman **2**. Le matériau est composé de torons de fibres de carbone, tissés suivant les trois directions de l'espace, et d'une matrice graphitée comblant les interstices. Le plasma est produit par chauffage

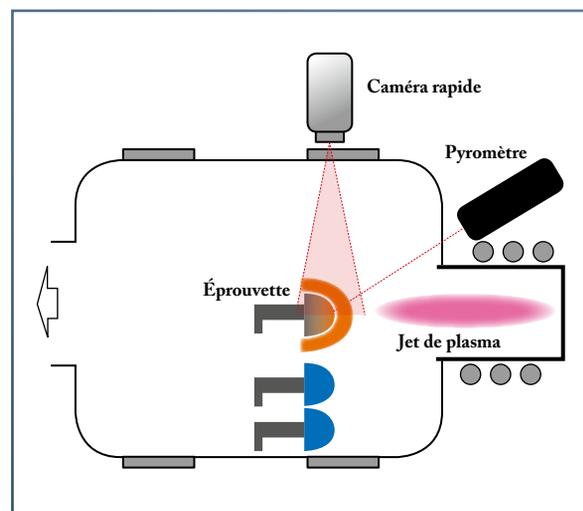


Figure 1

➤ Schéma de principe des essais soumettant une éprouvette de carbone à l'écoulement de la torche à plasma du moyen Plasmatron (Institut von Karman) **2**.

L'expérience se déroule à l'intérieur d'un caisson dépressurisé. Le plasma est produit grâce à l'échauffement par induction électromagnétique d'un jet d'air, qui, une fois porté à très haute température (12 000 K), impacte l'éprouvette. Celle-ci va fortement s'échauffer et s'ablater. L'évolution de forme et la température de paroi sont respectivement mesurées par une caméra rapide (plusieurs centaines d'images par seconde) et un pyromètre. Deux autres éprouvettes, de forme identique à l'éprouvette de matériau ablatif mais constituées de cuivre, servent à mesurer la pression et le flux de chaleur.

magnéto-inductif (puissance de 1,2 MW), induisant, autour des éprouvettes de quelques centimètres de diamètre, un environnement de 0,7 à 3 MW/m² pour des pressions variant entre 1,5 et 20 kPa (figure 1). La température atteinte par le carbone varie entre 2 100 et 2 800 K, mesurée par pyromètre, l'écoulement étant lui-même sondé par des sondes Pitot et des fluxmètres. Le gaz utilisé est de l'air, suscitant les réactions d'oxydation du carbone. Les conditions expérimentales produisent une ablation faible du matériau (moins d'un millimètre en plusieurs minutes), suffisante cependant pour faire apparaître un état de surface représentatif.

Parallèlement aux essais, des simulations numériques ont été menées, à l'échelle de l'écoulement où la température atteint les 12 000 K et à l'échelle microscopique des structures de la surface 4.

Après les essais, une caractérisation morphologique a été effectuée à l'aide d'un microscope électronique à balayage et par microscopie optique confocale et 3D, permettant de reconstruire la rugosité de surface à l'échelle mésoscopique (dixième de millimètre) et microscopique (micron). Il apparaît des crevasses élargies sur 100 µm environ, situées entre les torons de fibres et la matrice (figure 2). L'explication réside dans l'ablation différentielle des bords de la crevasse, reproduite par la simulation numérique, due à la consommation accrue de carbone par l'oxygène transporté de manière convective par l'écoulement. La réactivité est ainsi dépendante de l'orientation des fibres.

En augmentant le grossissement, l'aspect même des fibres apparaît (figure 3). Il en ressort qu'au niveau microscopique, l'ablation sur les éprouvettes révèle une structure

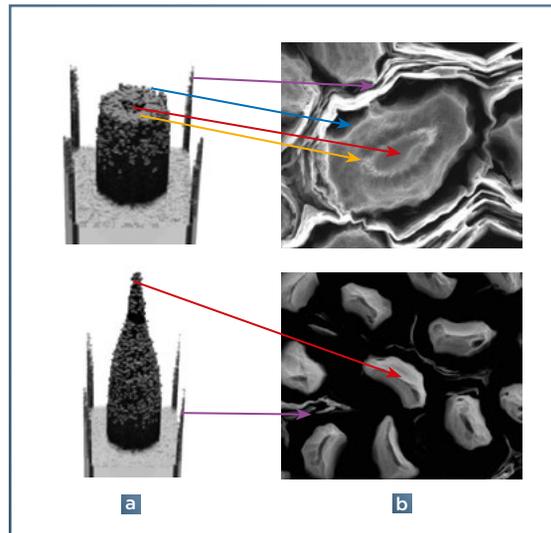


Figure 3

➔ Comparaison entre (a) la simulation numérique permettant d'interpréter l'aspect topologique des fibres et (b) l'observation au microscope électronique de la morphologie à l'échelle des fibres du matériau 3D carbone/carbone après ablation sous air. Lors de la phase transitoire (en haut) où la morphologie de surface n'a pas atteint son état d'équilibre, seul le matériau entourant la fibre a été particulièrement ablaté, dénudant le bord de fibre (flèche bleue); la fibre elle-même (flèche jaune) comporte un cœur plus résistant (flèche rouge). À l'état stationnaire d'équilibre (en bas), seul le cœur de fibre résiste, amenant un faciès en pointe; le feuillet interfibres est lui-même plus ablaté (flèche mauve).

complexe de la fibre comprenant un cœur résistant, une zone intermédiaire plus faible et une fine peau résistante. L'apport de la simulation numérique réside dans l'explication de la différence de comportement entre éprouvettes par la différence de durée des tests. En effet, la configuration initiale de paroi lisse après usinage se modifie progressivement sous l'action de l'ablation pour atteindre un état d'équilibre stationnaire après une ablation de quelques fractions de millimètre. Cette configuration d'équilibre n'a été atteinte que pour les essais suffisamment longs. À l'échelle des fibres, le transport de l'oxygène qui induit l'ablation se fait uniquement par diffusion dans l'écoulement.

Les résultats de la simulation numérique à l'échelle microscopique de la fibre sont présentés sur la figure 3. L'accord obtenu entre la simulation de l'état de surface et l'expérience est très satisfaisant.

En conclusion, les résultats de cette étude 3 aussi bien expérimentale que de simulation numérique ont permis de préciser l'origine de la rugosité apparente du matériau due, d'une part, aux différences de réactivité des constituants en phase d'oxydation sous air, d'autre part à l'influence plus ou moins importante suivant l'échelle considérée du transfert convectif dû à l'écoulement.

RÉFÉRENCES

- 1 G. DUFFA, *Ablative Thermal Protection Systems Modeling*, American Institute of Aeronautics and Astronautics (AIAA) Education Series (2013).
- 2 B. BOTTIN *et al.*, "Predicted and measured capability of the VKI 1.2 MW Plasmatron regarding re-entry simulation", *Proceedings of the 3rd European Symposium on Aerothermodynamics for Space Vehicles*, November 24-26, 1998, Noordwijk, The Netherlands, Vol. SP-426 of ESA Conf. Procs., ESA Publications, R. H. Harris editor, p. 553-560 (1998).
- 3 C. LEVET *et al.*, "Microstructure and gas-surface interaction studies of a 3D carbon/carbon composite in atmospheric entry plasma", *Carbon*, **114**, p. 84-97 (2017).
- 4 C. LEVET, *Ablation de matériaux carbonés sous très haut flux : étude multi-physique et couplage avec l'écoulement*, Thèse de l'université de Bordeaux soutenue le 5 avril 2017.

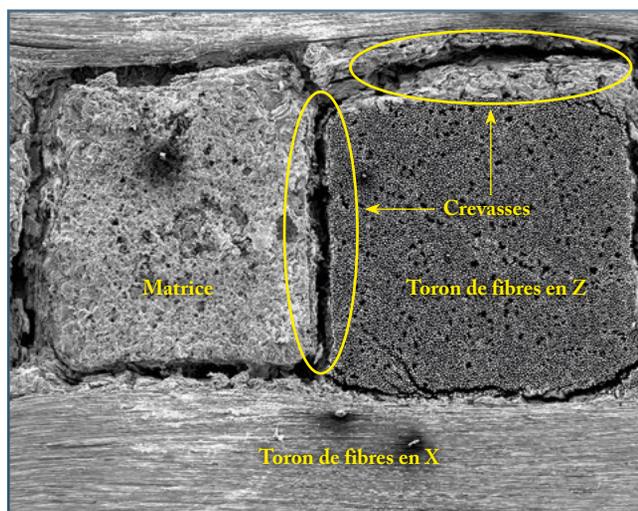


Figure 2

➔ Morphologie de surface du matériau 3D carbone/carbone après ablation sous air. Cette morphologie comprend des torons en direction X en bas, un toron de fibres en Z à droite. La structure carrée complémentaire est constituée par la matrice graphitée comblant les interstices. Les crevasses, inexistantes à l'état initial, sont dues à l'ablation différentielle, conséquence d'une réactivité différente des orientations de fibres.

MODÉLISATION DE BÉTONS ET DE CÉRAMIQUES DE BLINDAGE : COMPLÉMENTARITÉ DES ESSAIS À L'ÉCHELLE DU MATÉRIAU ET DE LA STRUCTURE

Le besoin de disposer de capacités prédictives pour répondre aux missions d'évaluation de la vulnérabilité des infrastructures ou des effets des armes conventionnelles nécessite la mise en place d'une démarche de simulation alliant modélisation physique, expérimentations et outils numériques. La maîtrise du comportement des matériaux constitutifs de l'arme (missile, charge explosive, etc.) et de la cible (structure en béton, aéronef, etc.) est de ce fait primordiale.

Les exemples présentés dans cet article concernent, d'une part, l'amélioration d'un modèle d'endommagement dédié aux bétons à ultrahaute performance renforcés par des fibres métalliques et, d'autre part, les étapes d'identification des paramètres d'un modèle micromécanique décrivant la fragmentation des céramiques de blindage. Dans les deux cas, les modèles développés sont alimentés par des essais de caractérisation à l'échelle du matériau. La validation des capacités de simulation est ensuite obtenue grâce à des essais d'impact à l'échelle de la structure.

La prédictibilité de la simulation numérique de phénomènes dynamiques intenses comme des explosions proches d'infrastructures ou des impacts dépend fortement de la précision des modèles de comportement utilisés pour tous les matériaux impliqués. Le développement et l'identification de ces modèles s'appuient souvent sur la mise en place d'essais de caractérisation dans lesquels il s'agit d'étudier spécifiquement la réponse dynamique du matériau à une sollicitation

maîtrisée. L'étape suivante consiste à entreprendre la validation de ces modèles à plus grande échelle, en menant par exemple des essais d'impact en laboratoire, pour lesquels une instrumentation importante est mobilisée : jauges pour mesurer la déformation ou la pression, interféromètre laser pour des mesures locales de vitesse, accéléromètre embarqué permettant d'enregistrer la décélération du projectile qui pénètre la cible, mesures de champs, etc. Lors de ces essais, les matériaux subissent

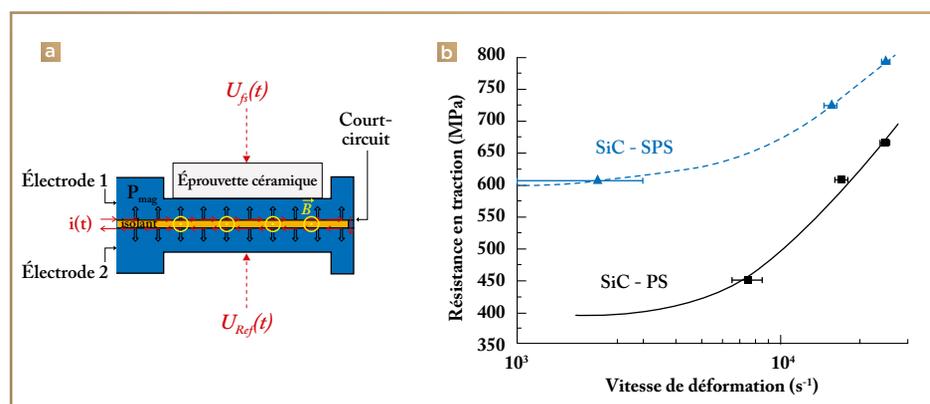


Figure 1

(a) Principe de l'essai d'écaillage pour l'étude de la fragmentation des céramiques : la décharge rapide d'un courant i intense se propageant sur la surface interne des électrodes induit un champ magnétique B ; leur combinaison se traduit par l'apparition d'une pression P_{mag} appliquée à l'électrode et transmise à l'éprouvette à tester. Une mesure de vitesse par interférométrie laser est réalisée sur la surface libre de l'échantillon U_s et une mesure de référence est réalisée sur l'électrode opposée U_{ref} . (b) Résultats obtenus pour deux carbures de silicium SiC obtenus par des procédés différents (PS ou SPS) : la résistance dynamique et la sensibilité à la vitesse de déformation sont intimement liées aux caractéristiques microstructurales.

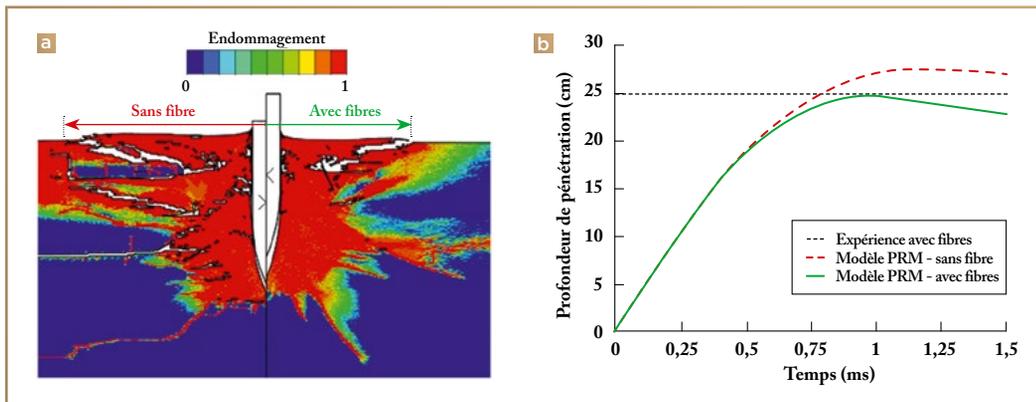


Figure 2

➤ Simulations numériques de l'impact d'un pénétrateur sur une cible en béton à ultrahaute performance avec et sans fibres. La prise en compte des fibres métalliques dans le modèle Pontiroli-Rouquand-Mazars (a) réduit l'étendue des dommages causés à la cible et le diamètre du cratère formé sur la face impactée (flèches) et permet de mieux restituer la décélération du projectile ainsi que (b) sa profondeur de pénétration dans la cible.

des chargements dynamiques complexes plus proches de l'application finale. En comparant les résultats expérimentaux avec les prévisions obtenues par simulation numérique, il est possible de valider les lois de comportement et d'endommagement des matériaux. Deux exemples illustrent cette démarche.

Le premier exemple est l'identification d'un modèle permettant de traiter la fragmentation dynamique des céramiques provoquée par un impact (figure 1a) 1. Les céramiques entrent souvent dans la conception de blindages de haut niveau de protection, qu'ils soient destinés aux combattants, ou qu'ils équipent des véhicules terrestres ou des avions. Ces matériaux présentent une très haute résistance dynamique en compression associée à une densité relativement faible. Toutefois, leur résistance en traction, généralement un ordre de grandeur inférieure à leur résistance dynamique en compression, et leur faible ténacité (quelques $\text{MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$) mènent à une fragmentation intense lors d'un impact. Pour pouvoir simuler un impact balistique sur un blindage céramique, il faut nécessairement être capable de modéliser finement l'endommagement dynamique provoqué dans la céramique.

Bien que les céramiques soient utilisées dans les blindages depuis de nombreuses années (principalement des alumines, des carbures de silicium et des carbures de bore), les liens entre la microstructure et le comportement dynamique sont mal maîtrisés. Dans l'étude 3 menée grâce au générateur électrique de pression intense (Gepi) du CEA – Gramat exploitant les principes des hautes puissances pulsées 4, des essais d'écaillage ont été menés sur une gamme de vitesses de déformation allant de 10^3 à 10^4 s^{-1} 2. Les matériaux étudiés dans 3 sont deux carbures de silicium (SiC) mis au point par Saint-Gobain à partir d'une unique poudre de SiC et de deux procédés de frittage (PS : frit-

tage naturel, SPS : frittage flash). Les essais réalisés sur ces deux microstructures grâce au Gepi ont permis de constater des écarts notables en matière de résistance dynamique et de sensibilité à la vitesse de déformation (figure 1b), et de faire le lien avec le niveau de densification ($> 99\%$ pour le SiC-SPS contre $98,5\%$ pour le SiC-PS) qui apparaît comme le paramètre microstructural le plus influent. Ces essais de caractérisation à l'échelle du matériau ont permis d'identifier et d'évaluer la pertinence d'un modèle d'endommagement décrivant les mécanismes activés au cours de la fragmentation dynamique 3. Ce modèle peut ensuite être exploité pour mieux comprendre l'influence de la microstructure sur le comportement balistique de blindages utilisant du SiC.

Le second exemple concerne l'extension d'un modèle dédié aux bétons. Ce modèle est utilisé pour simuler des agressions intenses comme une explosion au contact d'une structure ou l'impact d'un pénétrateur sur un bâtiment (figure 2a). Le modèle Pontiroli-Rouquand-Mazars (PRM) a été mis au point dès le milieu des années 1990. Il a ensuite été étendu pour prendre en compte le comportement plastique et la densification (compaction) constatée sous les fortes pressions de confinement 5.

Les bétons à ultrahaute performance (BUHP) présentent des résistances quatre à six fois supérieures aux bétons standards. Ils sont de plus en plus utilisés pour des ouvrages d'art ou des façades impossibles à concevoir avec un béton standard, mais ils peuvent aussi permettre d'augmenter le niveau de protection d'infrastructures sensibles. Les BUHP, comme le Ductal-FM®, sont souvent renforcés par des fibres métalliques. Ces fibres contribuent à résister à l'ouverture des fissures lors d'une sollicitation dynamique par des mécanismes de pontage, limitant ainsi l'étendue des dommages.

Les travaux récents ont eu pour objectif de proposer une extension du modèle PRM

pour un BUHP fibré en s'appuyant sur un ensemble de résultats d'essais de caractérisation menés sur ce matériau 5. Outre la validation à l'échelle du matériau, le modèle a pu être confronté à des résultats expérimentaux à l'échelle de la structure puisqu'une campagne d'essais d'impact a été conduite au CEA – Gramat sur le BUHP fibré. Les confrontations entre résultats expérimentaux et prévisions numériques illustrent le bénéfice apporté par la nouvelle formulation du modèle (figure 2) 6.

RÉFÉRENCES

- 1 J.-L. ZINSZNER, *Identification des paramètres matériau gouvernant les performances de céramiques de blindage*, Thèse de doctorat de l'université de Lorraine, soutenue le 19 décembre 2014.
- 2 B. ERZAR, E. BUZAUD, "Shockless spalling damage of alumina ceramic", *Eur. Phys. J. Special Topics*, **206**, p. 71-77 (2012).
- 3 J.-L. ZINSZNER *et al.*, "Strain rate sensitivity of the tensile strength of two silicon carbides: Experimental evidence and micromechanical modelling", *Phil. Trans. R. Soc. A*, **375**, 20160167 (2017).
- 4 F. LASSALLE *et al.*, « Hautes puissances pulsées pour l'étude des environnements sévères », *Revue chocs*, **47**, p. 57-63 (2016).
- 5 C. PONTIROLI *et al.*, "Predicting concrete behaviour from quasi-static loading to hypervelocity impact: An overview of the PRM model", *Eur. J. Environ. Civil Eng.*, **14**, p. 703-727 (2010).
- 6 B. ERZAR *et al.*, "Ultra-high performance fibre-reinforced concrete under impact: Experimental analysis of the mechanical response in extreme conditions and modelling using the PRM model", *Phil. Trans. R. Soc. A*, **375**, 20160173 (2017).

PETAL, UN LASER PÉTAWATT DE HAUTE ÉNERGIE : PERFORMANCES EXPÉRIMENTALES ET MODÉLISATION

PETAL est un laser dédié aux expériences laser-plasma menées au centre de la chambre expérimentale du Laser Mégajoule (LMJ) pour la communauté académique. Il a déjà produit une impulsion de plus de 1 pétawatt (PW), soit 10^{15} W, en 700 femtosecondes (fs), soit $0,7 \times 10^{-12}$ s. La caractérisation du faisceau à un tel niveau de puissance a nécessité le développement de diagnostics spécifiques, mais aussi le recours à des codes de simulation. L'énergie produite est aujourd'hui limitée par la résistance au flux laser des miroirs de fin de chaîne. Une démarche expérimentale et de modélisation de ce processus a été engagée. Elle constitue le fondement d'une nouvelle solution technologique qui doit repousser cette limite de performance.

Le laser PETAL (PETawatt Aquitaine Laser) est caractérisé par l'énergie produite, de la classe kilojoule, et par la durée de ses impulsions, dix mille fois plus courte que celle du Laser Mégajoule (LMJ). L'architecture de sa section amplificatrice est ainsi proche de celle d'un faisceau du LMJ afin de pouvoir délivrer une énergie de plusieurs kilojoules. La mise en œuvre du principe de l'amplification dite à dérive de fréquence (figure 1), avec l'étirement de la durée de l'impulsion avant amplification puis sa compression après amplification, permet de véhiculer une telle énergie sur cible dans une impulsion de durée aussi courte. Le laser PETAL a été conçu et réalisé par le CEA, maître d'œuvre, pour le compte de la Région Nouvelle-Aquitaine, maître d'ouvrage, avec le soutien financier de l'État et de l'Union européenne.

MISE EN ŒUVRE ET MODÉLISATION DU LASER PETAL

La mise en route de PETAL s'est déroulée en différentes étapes. Tout d'abord, les points de fonctionnement des étages d'amplification ont été recherchés avec une source monochromatique, de type LMJ, puis avec des impulsions courtes à spectre large. Ensuite, un nouveau schéma de compression a été déployé et validé. Son originalité repose sur la subdivision du faisceau laser en quatre sous-pupilles dont les impulsions sont comprimées par quatre compresseurs indépendants 1. Ce schéma a nécessité une méthode d'alignement et des outils de réglage spécifiques afin de synchroniser à mieux que 50 fs (millionnièmes de milliardième de seconde) les impulsions en sortie des quatre compresseurs. Il s'agit également d'assurer un déphasage du faisceau, sous-pupille à

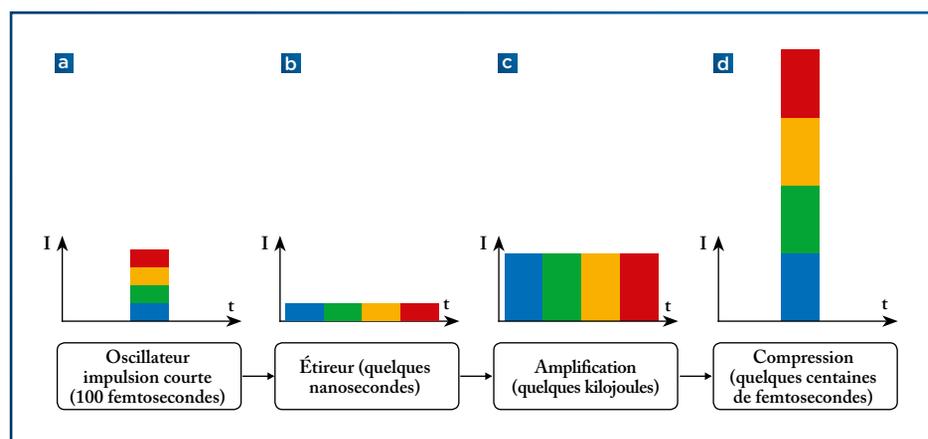


Figure 1

➔ Principe de l'amplification à dérive de fréquence 2 : (a) l'impulsion courte multi-longueurs d'onde est (b) étirée temporellement (répartition dans le temps de ses longueurs d'onde) (c) pour permettre son amplification sans dommage. Puis, après amplification, elle est (d) comprimée à une durée proche de sa durée initiale pour produire le maximum de puissance sur la cible.

sous-pupille, qui reste inférieur à l'équivalent de 100 nm. Des diagnostics adaptés (de mise en phase, d'interférométrie spectrale, de spectrométrie 2D, de corrélation croisée monocoup, etc.) ont été développés pour mener les réglages et la caractérisation de l'impulsion comprimée.

Les diagnostics ne donnent cependant pas accès à l'ensemble des grandeurs physiques du faisceau, en particulier au couplage des dépendances spatio-temporelles, c'est-à-dire au fait qu'en différents points du faisceau la forme temporelle est différente. L'utilisation de codes de calcul, en particulier du code Miró, acronyme de Mathématiques et Informatique pour la Résolution des problèmes d'Optique, code 3D développé au CEA – DAM **3**, donne accès à une vision plus complète du faisceau. Le faisceau peut ainsi être modélisé depuis la source jusqu'à la tache focale avec un accès aux grandeurs physiques en tout point du laser. Toutes les informations disponibles sont intégrées dans ce modèle: profils de gain des amplificateurs, cartographies de transmission et de front d'onde des composants, etc. Pour la partie compresseur, tous les paramètres nécessaires sont ajoutés afin de reproduire la procédure de réglage expérimentale. Pour comparaison aux résultats de mesure de chaque expérience, les diagnostics laser sont aussi modélisés.

La modélisation du fonctionnement des voies de mesure sous Miró a permis de finaliser les réglages du laser et d'aboutir à un faible écart entre les mesures effectuées et les prévisions du calcul (**figure 2**) **4**. Ainsi, un faisceau véhiculant une puissance de 1,15 PW **1**, en 700 fs en sortie de compression, a été produit en 2015; la même année, le kilojoule à 1 ps a été dépassé à plusieurs reprises. Le dernier trimestre 2017 a été consacré à la réalisation des premières campagnes expérimentales.

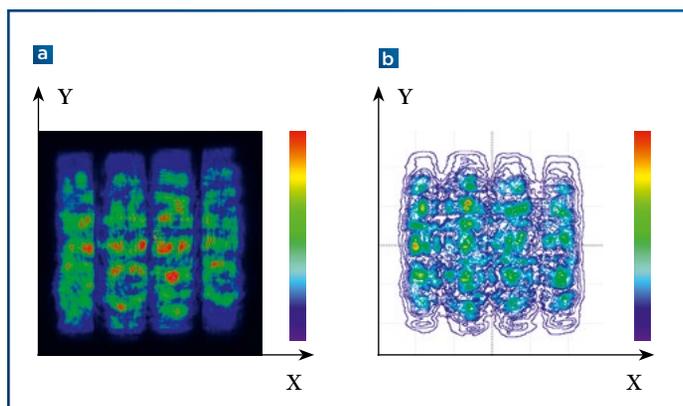


Figure 2

➔ Comparaison entre des profils spatiaux (a) expérimental et (b) simulé d'un faisceau qui subit une propagation non linéaire dans les voies de mesure. Les calculs sont faits avec le code Miró **3**; une quasi-concordance des profils spatiaux mesuré et calculé est observée.

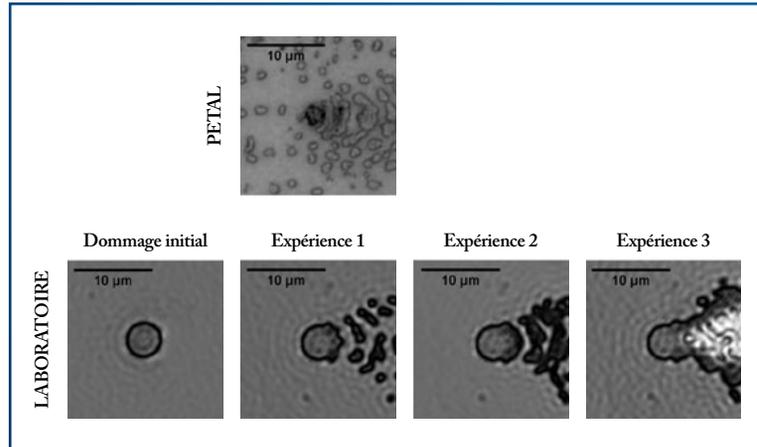


Figure 3

➔ Comparaison de l'endommagement observé sur un miroir testé sur PETAL avec la croissance d'un dommage réalisée et observée en laboratoire sur un échantillon. Des structures semblables sont observées.

MESURE ET MODÉLISATION DE L'ENDOMMAGEMENT DES MIROIRS

Lors des premiers transports du faisceau laser dans la chambre d'expériences, en 2015, les miroirs situés après le compresseur ont subi des endommagements. Lors des campagnes expérimentales suivantes, l'énergie du faisceau a donc été limitée à 400 J (équivalente à une puissance de 0,5 PW), pour éviter la croissance des dommages sur ces composants optiques. Les ajustements réalisés en 2015-2016 sur les traitements des miroirs permettent à ceux-ci de résister à des énergies de l'ordre du kilojoule au voisinage de la picoseconde: des miroirs de ce type remplaceront ceux actuellement sur chaîne lors d'une prochaine maintenance.

La valeur seuil de 400 J pour les miroirs actuellement utilisés a été évaluée à l'issue d'expériences d'amorçage et de croissance de dommages en laboratoire, menées sur des échantillons représentatifs des miroirs de transport PETAL dans un régime d'impulsion similaire.

Une modélisation du phénomène de croissance des dommages, confortée

par des essais conduits sur des dommages-types à géométrie simple (**figure 3**), a mis en évidence la dépendance de ce phénomène aux variations du champ électrique en surface des miroirs diélectriques. Une comparaison de ces résultats avec des observations d'un miroir endommagé de PETAL (**figure 3**) prouve le bien-fondé de cette démarche et démontre le bon accord entre la simulation et les expériences **5**. Ils servent aujourd'hui de point de départ au développement de nouvelles technologies de traitement à haute réflectivité plus résistant au flux laser. Cela devrait permettre de repousser la limite de la puissance délivrée sur cible à plusieurs pétawatts.

RÉFÉRENCES

- 1 N. BLANCHOT et al.**, "1.15 PW-850 J compressed beam demonstration using the PETAL facility", *Opt. Express*, **25**, p. 16957-16970 (2017).
- 2 N. BLANCHOT, C. ROUYER**, « Laser de puissance à impulsions ultrabrèves », *Revue chocs* n° 22, p. 43-52 (1999).
- 3 O. MORICE et al.**, "Miró: Complete modeling and software for pulse amplification and propagation in high-power laser systems", *Opt. Eng.*, **42**, p. 1530-1541 (2003).
- 4 H. COÏC et al.**, "Modeling of the petawatt PETAL laser chain using Miró code", *Appl. Opt.*, **56**, p. 9491-9501 (2017).
- 5 M. SOZET et al.**, "Sub-picosecond laser damage growth on high reflective coatings for high power applications", *Opt. Express*, **25**, p. 25767-25781 (2017).

DÉVELOPPEMENTS EXPÉRIMENTAUX POUR LA DIFFRACTION X SOUS CHOC

Analyser et modéliser le comportement d'un matériau sous choc en identifiant notamment ses changements de phase cristalline est actuellement un défi. Dans ce but, le CEA – Gramat a développé un banc de diffraction X sous choc original **1** associant un lanceur à gaz et une source X impulsionnelle de type X-pinch. Cette source, alimentée par un générateur de courant impulsionnel très compact, a été étudiée dans le but de caractériser son intérêt pour la diffraction X. Des essais de diffraction X en statique ont ensuite été réalisés avant de définir la configuration des essais sur lanceur. La géométrie de diffraction, la synchronisation du générateur X avec la propagation du choc et la protection du détecteur 2D ont été mises au point sur des premières expériences dynamiques.

Des données expérimentales sont nécessaires pour comprendre les changements de phase sous sollicitation dynamique des matériaux et mettre au point des équations d'état à plusieurs phases. Jusqu'ici, les mesures de vitesse et de température ont permis une description macroscopique de l'état de la matière. Accéder à la structure cristallographique du matériau permettrait d'améliorer la compréhension des mécanismes de changement de phase et de leur cinétique. Ces vingt dernières années, un grand nombre d'expériences de diffraction X sous choc ont vu le jour. Les sources X étaient générées soit sur de grandes installations laser ou sur synchrotron, soit à l'aide de générateurs de haute tension **2**.

Au CEA – Gramat, un générateur de hautes puissances pulsées très compact (encombrement < 0,3 m³) a été développé pour alimenter une source X-pinch, rendant possibles, pour la première fois avec ce type de générateur, des essais de diffraction X en laboratoire. Un lanceur à gaz permet la génération d'un choc pour amener la

matière vers une transition solide-solide ou solide-liquide. La mesure dynamique sous choc, dont la configuration est présentée en **figure 1**, doit préciser la phase cristalline en présence, par analyse de la figure de diffraction obtenue. Ces mesures seront exploitées pour déterminer les début et fin de transformation dans le diagramme de pression et de température du matériau étudié.

SOURCE X-PINCH

Une charge X-pinch (**figure 2**) est généralement constituée de 2 à 4 fils métalliques de quelques dizaines de micromètres de diamètre que l'on croise pour former une croix X entre les électrodes sous vide d'un générateur impulsionnel à fort courant (> 100 kA). La décharge du courant dans le X-pinch provoque l'explosion des fils puis la formation d'un plasma dense et chaud, comprimé par la pression magnétique au point de croisement des fils. Ce plasma émet un rayonnement X thermal de quelques nanosecondes avec un spectre en énergie inférieur à 10 keV. Le processus

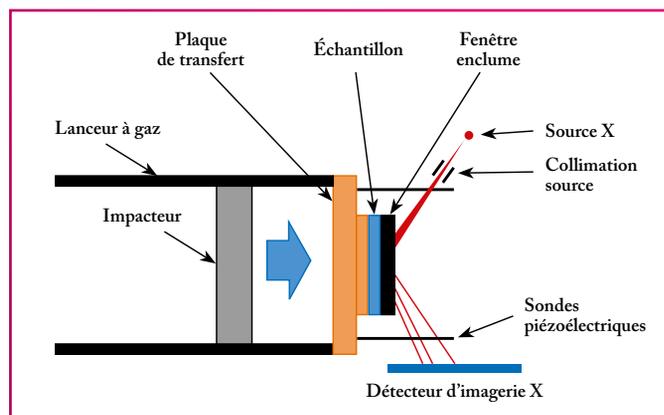


Figure 1

➤ Configuration expérimentale des essais de diffraction X sous choc. L'impacteur est mis en vitesse par un lanceur à gaz. Les sondes piézoélectriques, déclenchées par le débouché du choc à l'arrière de la plaque de transfert, permettent le déclenchement du générateur X. La source X est collimatée et sonde la face arrière de l'échantillon maintenu sous choc par une fenêtre enclume. Un détecteur d'imagerie X permet la détection des points de diffraction.

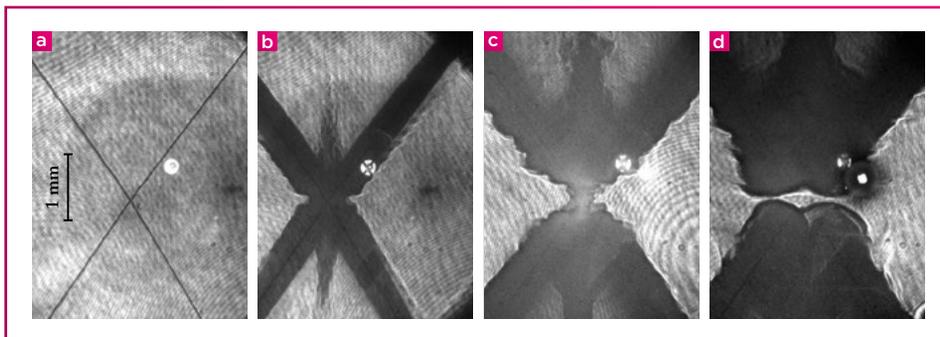


Figure 2

➔ Imagerie laser (ombrosopie) du processus de fonctionnement d'une charge X-pinch. (a) Avant essai - $t = 0$ ns : la charge est constituée de deux fils métalliques micrométriques croisés entre les électrodes du générateur. (b) $t = 85$ ns : la décharge de courant provoque l'explosion des fils et génère un plasma (en noir). (c) $t = 165$ ns : au point de croisement, ce plasma, comprimé magnétiquement et chauffé par effet Joule, émet un rayonnement X thermal (< 10 keV). (d) $t = 205$ ns : en fin de compression, la colonne de plasma se rompt, des électrons libres sont accélérés et freinés au travers d'une diode plasma, entraînant l'émission d'un rayonnement X de freinage (10-100 keV).

du X-pinch se poursuit par une rupture de la colonne de plasma et par la formation d'une diode plasma. L'augmentation de la tension à ses bornes provoque l'accélération puis le freinage d'électrons libres dans le plasma des fils : un rayonnement X de plusieurs dizaines de nanosecondes est alors émis avec un spectre en énergie compris entre 10 et 100 keV. C'est ce rayonnement de freinage, plus énergétique, qui est exploité pour les expériences de diffraction X.

Pour valider cette source X-pinch, des essais de diffraction X ont été réalisés en statique, en mode transmission sur des échantillons d'aluminium et de fluorure de lithium (figure 3). Les points des figures de diffraction obtenues sont parfaitement reproduits par un logiciel de cristallographie reprenant les conditions expérimentales initiales : chaque point correspond à un plan cristallin bien identifié suivant la loi de Bragg. L'analyse des figures de diffraction montre non seulement les raies d'émission caractéristiques du matériau des fils (ici en molybdène), mais aussi le continuum du spectre, qui ont contribué à la formation de points de diffraction. Potentiellement, le X-pinch peut donc être exploité pour la diffraction X en mode monochromatique (raie caractéristique) ou large bande, offrant ainsi plus de possibilités d'expérimentations.

PREMIERS ESSAIS DYNAMIQUES

L'expérience sous sollicitation dynamique intègre cette source X-pinch sur un lanceur à gaz. La géométrie de diffraction se fait à faible incidence par rapport à la surface de l'échantillon choqué, de manière à ce que le

générateur X et le détecteur d'imagerie X, un écran radioluminescent à mémoire (ERLM), soient en dehors de la gerbe d'éclats. Dans ces conditions, pour satisfaire la loi de Bragg et mettre en valeur des points de diffraction utiles pour renseigner sur la structure cris-

tallographique de la matière, le spectre X d'intérêt se situe entre 10 et 30 keV. Ce spectre, peu pénétrant, est en partie absorbé par la fenêtre enclume nécessaire au maintien sous pression de l'échantillon et par les protections mises en œuvre devant l'ERLM. La configuration expérimentale a donc été optimisée pour maximiser le flux reçu par l'ERLM.

Des expériences préliminaires ont été menées sur le lanceur pour, d'une part, valider la synchronisation du flash X avec le débouché du choc à l'interface échantillon/fenêtre enclume et, d'autre part, définir une cible limitant l'expansion radiale de la gerbe d'éclats en direction de l'ERLM.

Par la suite, des figures de diffraction X ont été obtenues sur du chlorure de potassium (KCl) sous choc et sous changement de phase solide-solide. Les premiers résultats sont prometteurs et des études sont en cours pour améliorer la détection et la résolution des points de diffraction : évaluation de détecteurs d'imagerie numériques et de charges X-pinch hybrides 3.

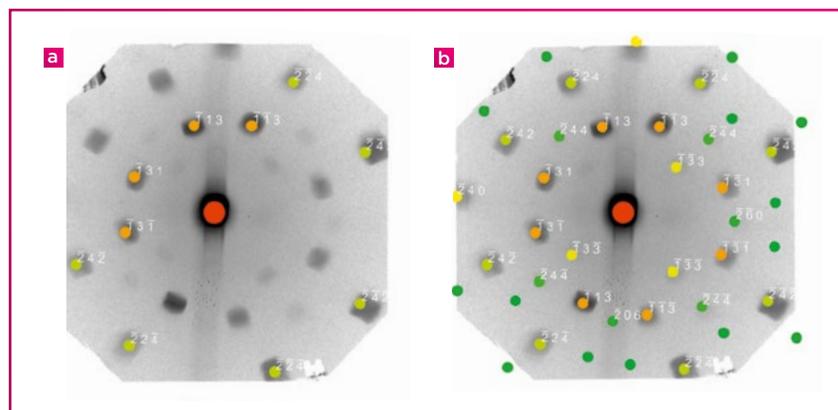


Figure 3

➔ Résultats de diffraction X en transmission d'un échantillon LiF d'épaisseur 1 mm avec une source X-pinch en molybdène. (a) Points diffractés par les raies K du molybdène (17 à 20 keV). (b) Points diffractés par les raies K du molybdène et par le continuum couvrant un spectre de 15 à 35 keV. Les points de diffraction prédits par la cristallographie (en couleur, la couleur dépendant de l'intensité diffractée et les chiffres correspondant au plan cristallin) sont superposés à l'image expérimentale : l'analyse cristallographique permet d'identifier le cristal en présence. Le X-pinch est potentiellement exploitable en diffraction X monochromatique et large bande.

RÉFÉRENCES

- 1 F. ZUCCHINI, C. CHAUVIN, S. N. BLAND *et al.*, "A novel setup for time-resolved X-ray diffraction on gas gun experiments", *Proceedings of the Shock Compression of Condensed Matter Conference*, Tampa Bay, USA, June 14-19, 2015, *AIP Conference Proceedings*, **1793**, 060001 (2017).
- 2 T. D'ALMEIDA, Y. M. GUPTA, "Real-Time X-Ray Diffraction Measurements of the Phase Transition in KCl Shocked along [100]", *Phys. Rev. Lett.*, **85**, p. 330-333 (2000).
- 3 T. A. SHELKOVENKO *et al.*, "Hybrid X-pinch with conical electrodes", *Phys. Plasmas*, **17**, 112707 (2010).

DÉVELOPPEMENT DE NOUVEAUX SCINTILLATEURS POUR LES DIAGNOSTICS PLASMA DU LASER MÉGAJOULE

Dans le cadre du projet Laser Mégajoule, la cible de fusion par confinement inertiel, remplie d'un mélange de deutérium-tritium, libérera une grande variété de rayonnements, comme des rayons X et gamma ainsi que des neutrons. Les premiers étant rapidement suivis par les seconds, les détecteurs chargés d'enregistrer les signaux expérimentaux devront avoir une résolution temporelle de l'ordre de la nanoseconde. Les systèmes de détection basés sur la conversion du rayonnement X vers le visible doivent éviter le rayonnement parasite Cerenkov induit par le passage des particules chargées au sein même du détecteur; en effet, ce rayonnement émet dans le bleu et rend impossible l'utilisation d'instruments dans cette gamme spectrale. D'où le besoin de nouveaux scintillateurs plastiques à temps de réponse rapide, émettant dans le rouge avec un rendement lumineux suffisant.

Lors de l'implosion d'une cible de fusion par confinement inertiel est émis un rayonnement X, caractéristique de son échauffement et donc important à mesurer, ainsi que des rayonnements gamma et neutrons, caractéristiques des réactions nucléaires en jeu. Un tel environnement radiatif impose d'installer les instruments de mesure loin de la cible et nécessite de convertir ce rayonnement X en lumière visible, plus facile à transporter. Cette étude porte sur la création d'un composant capable d'assurer cette conversion et sur son paramétrage en termes de longueur d'onde d'émission spectrale maximale (λ_{em}^{max}), de temps de décroissance (τ) et de rendement lumineux (R).

La conversion du rayonnement X en lumière visible (380-780 nm) est rendue possible par l'utilisation de scintillateurs, matériaux fluorescents liquides ou plastiques présentant la capacité d'émettre de la lumière lorsqu'ils sont soumis à un rayonnement ionisant. Ils sont constitués d'une matrice, généralement un solvant organique pour les liquides ou un polymère comme le polystyrène pour les plastiques, dont le rôle est d'absorber le rayonnement X et de le réémettre dans l'UV. Cette matrice contient plusieurs molécules fluorescentes spécifiques, les fluorophores, capables d'assurer une cascade de processus d'absorption-émission à

partir du rayonnement UV initial jusqu'à la longueur d'onde retenue pour effectuer les mesures. On y trouve également une molécule dont le rôle est d'accélérer la fluorescence des fluorophores selon des processus photochimiques complexes. La nature de chaque molécule et sa concentration relative sont des critères à étudier pour optimiser le rendement lumineux du scintillateur.

La difficulté première dans l'optimisation d'un scintillateur vient du fait qu'une amélioration de la réponse temporelle va de pair avec une diminution du rendement lumineux, c'est-à-dire de sa capacité à convertir l'énergie des particules incidentes **1**. Des performances acceptables ont été atteintes sur des scintillateurs liquides **2** mais pas plastiques **3**. Un scintillateur répondant à notre cahier des charges n'existant pas dans le commerce, il est donc nécessaire d'en développer un par nos propres moyens.

Le nouveau scintillateur doit opérer dans un domaine spectral éloigné du bleu, caractéristique de l'émission parasite Cerenkov; aussi un composant émettant dans la partie rouge du spectre ($\lambda_{em}^{max} \sim 600-650$ nm) semble-t-il adéquat. Concernant les paramètres τ et R , le scintillateur du commerce BC-422Q a été pris comme référence, l'objectif retenu pour le nouveau scintillateur étant d'atteindre la

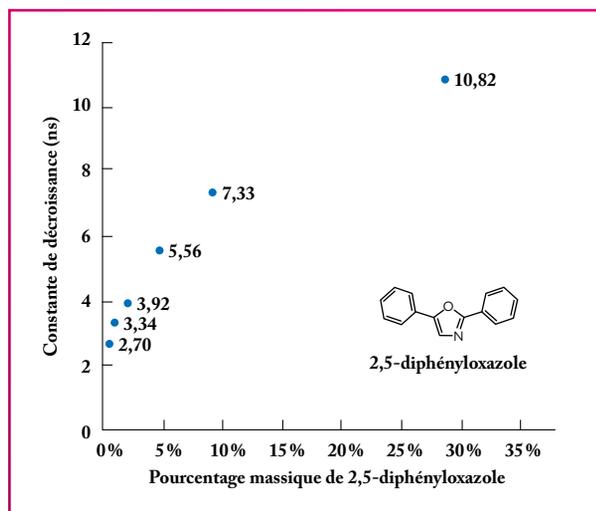


Figure 1

➔ Comportement de la constante de décroissance de photoluminescence, en nanosecondes, de la molécule de 2,5-diphényloxazole (représentée en bas à droite) dans un solvant organique liquide (ici, le toluène), en fonction de sa concentration exprimée en pourcentage massique. L'influence de la concentration sur la réponse temporelle de la lumière est clairement visible : moins la quantité de 2,5-diphényloxazole est importante, plus la réponse du scintillateur est rapide.

moitié de son rendement lumineux et un temps de décroissance compris entre 1 ns, valeur affichée pour le BC-422Q, et 7 ns, valeur classique pour un scintillateur plastique. Enfin, sa densité et ses dimensions doivent être choisies judicieusement pour qu'il soit plus sensible au rayonnement X qu'aux rayons gamma et aux neutrons.

Dans le cadre de cette étude, des scintillateurs liquides (plus faciles à préparer), puis plastiques ont été synthétisés. C'est en phase liquide que les paramètres génériques sont déterminés dans un premier temps : choix des molécules fluorescentes, de la

molécule accélératrice de la fluorescence et de leur concentration. L'influence de la concentration de la molécule accélératrice sur la réponse temporelle de la lumière a été mesurée et est visible sur la **figure 1**.

Lorsque le choix de la concentration est validé en phase liquide, il est réajusté en phase plastique, l'analogie entre les deux phases n'étant pas totale **4**. Pour les plastiques, après chauffage du monomère contenant les molécules adéquates et sa polymérisation complète, le matériau brut est découpé et poli jusqu'à obtenir un scintillateur de diamètre 49 mm

et d'épaisseur 10 mm (**figure 2**). Une matrice de polystyrène a ainsi été choisie, avec le 2,5-diphényloxazole et le rouge de Nil comme molécules fluorescentes, et la di-isopropyléthylamine comme molécule accélératrice de la fluorescence.

Le **tableau 1** donne les résultats obtenus pour quatre échantillons du nouveau scintillateur plastique (**figure 2**). Les quatre échantillons émettent bien dans le rouge et un rendement lumineux satisfaisant, de 300 photons par MeV, a été obtenu pour l'échantillon 3 ; en même temps, le temps de décroissance a été mesuré comme étant inférieur à 7 ns pour chacun des échantillons. Cette étude de faisabilité constitue une première étape nécessaire à la réalisation d'un prototype d'instrument susceptible d'être intégré aux diagnostics du Laser Mégajoule.

La possibilité d'obtenir des scintillateurs plastiques émettant dans le rouge ($\lambda_{em}^{max} \sim 610-620$ nm), rapides ($\tau < 7$ ns) et avec un rendement lumineux satisfaisant (300 photons/MeV) a ainsi été démontrée. Ces travaux seront poursuivis, en particulier pour que le temps de décroissance soit plus proche de la nanoseconde.

Échantillon	λ_{em}^{max} (nm)	R (ph/MeV)
BC-422Q 2 %	406	760
#1	620	160
#2	610	70
#3	618	300
#4	616	80

Tableau 1

➔ Longueur d'onde maximum d'émission λ_{em}^{max} et rendement lumineux R des échantillons 1 à 4 (**figure 2**) comparés à ceux du scintillateur plastique du commerce BC-422Q. Le temps de décroissance a été mesuré à moins de 7 ns pour chacun d'eux.



Figure 2

➔ Photographie de quatre échantillons d'un nouveau scintillateur plastique émettant dans le rouge développé par le CEA. Les bonnes performances obtenues sont données dans le **tableau 1**.

RÉFÉRENCES

- 1 B. BENGTON et al.**, "Study of primary energy transfer process in ultrafast plastic scintillators", *Nucl. Instr. Methods*, **155**, p. 221-231 (1978).
- 2 J.-M. FLOURNOY et al.**, "New Red-Emitting Liquid Scintillators with Decay Times Near One Nanosecond", *Proc. of the International Conference on New Trends in Liquid Scintillation Counting and Organic Scintillators*, Gatlinburg, USA, October 2-5, 1989, H. Ross, J. E. Noakes, J. D. Spaulding (Eds), Lewis Publishers, p. 83-91 (1991).
- 3 I. B. BERLMAN et al.**, "A fast red-emitting plastic scintillator", *Nucl. Instr. Methods*, **178**, p. 411-413 (1980).
- 4 M. HAMEL et al.**, "Red-emitting liquid and plastic scintillators with nanosecond time response", *J. Lumin.*, **190**, p. 511-517 (2017).

J.-M. Belloir,
C. Virmontois, O. Gilard
Centre national d'études
spatiales (CNES), Toulouse

P. Paillet,
M. Raine
CEA – DAM
Île-de-France

V. Goiffon, C. Durnez, R. Molina, P. Magnan
Institut supérieur de l'aéronautique et
de l'espace (ISAE-SUPAERO), Toulouse

NOUVEAUX CAPTEURS D'IMAGE EN ENVIRONNEMENT RADIATIF : COMPRÉHENSION DES MÉCANISMES DE DÉGRADATION

Les capteurs d'images CMOS (Complementary Metal Oxide Semiconductor) sont des composants électroniques utilisés pour de nombreuses applications scientifiques, telles que l'observation spatiale ou les expériences de fusion nucléaire. Ces capteurs d'images ont vu leurs performances démultipliées ces dernières années grâce aux avancées incessantes de la microélectronique, et présentent des avantages indéniables (polyvalence, mise en œuvre simplifiée, consommation réduite, etc.) qui les destinent à remplacer les CCD (Coupled Charge Devices). Certains instruments d'observation spatiale, comme le futur rover d'exploration martienne qui sera lancé en 2020, en sont déjà équipés. Toutefois, en environnement spatial ou nucléaire, ces imageurs sont soumis à des flux de particules pouvant rapidement dégrader leurs performances électro-optiques. Ce travail cherche à comprendre la nature des défauts cristallins formés dans les capteurs d'images CMOS lorsqu'ils sont exposés à des neutrons de fusion nucléaire sur les installations Laser Mégajoule ou ITER, ou à des protons de haute énergie dans l'espace.

Les protons, électrons et ions présents dans l'espace ainsi que les neutrons émis lors des expériences de fusion nucléaire peuvent déplacer des atomes dans la structure interne d'un capteur d'images, au cœur du cristal de silicium formant la zone photosensible des pixels (figure 1). Ces effets de déplacement atomique peuvent conduire à la formation de défauts stables, c'est-à-dire d'irrégularités permanentes dans la structure cristalline normalement continue du silicium. Certains de ces défauts stables

introduisent des niveaux d'énergie dans la bande interdite du silicium, entre la bande de valence où les électrons sont bloqués et la bande de conduction où les électrons sont libres. Ces états facilitent le passage des électrons de valence vers la bande de conduction lorsque leur énergie thermique est suffisante. Ce processus de génération thermique engendre l'apparition d'un courant parasite appelé courant d'obscurité. Il correspond au courant mesuré en l'absence de lumière et vient s'ajouter au signal utile. Le signal utile est le courant

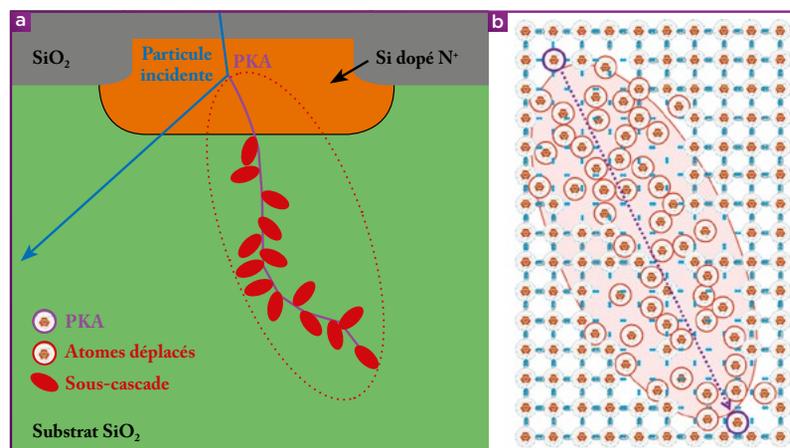


Figure 1

(a) Physiologie de la cascade ramifiée de déplacements atomiques produite par un premier atome déplacé de forte énergie (PKA, pour Primary Knocked-on Atom). (b) Détail de la sous-cascade élémentaire correspondant aux déplacements induits dans le réseau cristallin du silicium par un second atome déplacé de faible énergie.

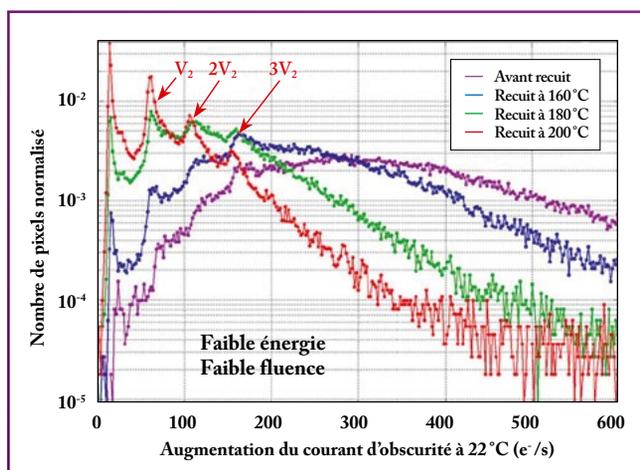


Figure 2

➤ Histogramme du courant d'obscurité dans un capteur d'images irradié par une particule de faible énergie (proton de 110 keV) et à faible fluence ($3,2 \times 10^{10}$ p/cm²). Des pics correspondant à des défauts ponctuels particuliers apparaissent, telle la bi-lacune du silicium V₂, et sont de plus en plus visibles lorsque la température de recuit augmente et fait disparaître les défauts les moins stables.

d'électrons libres généré par l'absorption de la lumière; les électrons excités par les photons sont dans ce cas directement émis vers la bande de conduction. Les particules très énergétiques sont capables de créer simultanément de nombreux défauts complexes dans le pixel frappé, ce qui conduit à une augmentation très importante du courant d'obscurité du pixel touché et donc à une forte diminution de sa sensibilité et de sa dynamique.

D'autre part, les capteurs d'images CMOS sont idéaux d'un point de vue statistique pour caractériser les défauts formés: chaque pixel correspond en effet à un microvolume de silicium dans lequel le courant parasite peut être mesuré indépendamment. Ainsi, avec les milliers ou millions de pixels disponibles, il est possible de tracer un histogramme des augmentations du courant d'obscurité après irradiation: à faible fluence, cet histogramme contient des pics qui traduisent la présence de défauts bien particuliers dans de nombreux pixels (figure 2). Un recuit à température croissante permet d'accélérer la disparition des défauts les moins stables, et fait ainsi apparaître des pics correspondant à des défauts ponctuels particuliers (ici la bi-lacune de silicium, V₂), représentant une dégradation permanente.

Cette technique de caractérisation, appelée spectroscopie du courant d'obscurité, a permis d'identifier plusieurs types de défauts ponctuels induits par des particules, tels que la bi-lacune ou le complexe lacune-phosphore 1.

Pour une particule très énergétique des environnements spatial et nucléaire, les dégâts induits sont tellement importants

que de nombreux défauts sont créés simultanément. La spectroscopie atteint alors ses limites et, faute d'identifier les défauts, il est possible de développer un modèle empirique de prédiction de l'histogramme du courant d'obscurité 2. Pour un capteur d'images donné et pour un environnement dont la composition en particules (type, flux et énergie) est connue, ce modèle permet d'estimer la distribution de l'augmentation du courant parasite du capteur d'images irradié,

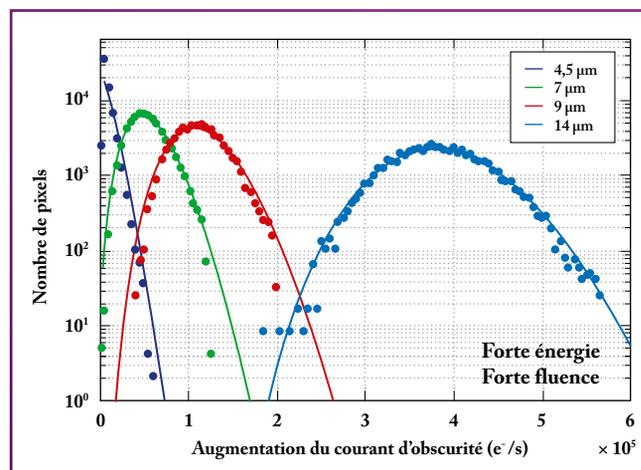


Figure 3

➤ Comparaison de l'augmentation du courant d'obscurité prédite (traits pleins) dans des pixels de différentes tailles (4,5, 7, 9 et 14 µm), aux résultats expérimentaux (symboles) pour une irradiation aux neutrons à forte fluence. La non-uniformité des réponses est parfaitement reproduite.

et donc de déduire l'impact des radiations sur les performances du capteur (figure 3). En effet, en plus de calculer l'augmentation moyenne du courant parasite dans le capteur d'images, ce modèle permet d'estimer la non-uniformité de cette augmentation entre les différents pixels, qui peut avoir un impact très négatif sur les performances.

CONCLUSION

Ces travaux ont permis d'avancer dans la compréhension scientifique des défauts responsables de l'augmentation du courant d'obscurité dans les capteurs d'images d'avenir en environnement radiatif, et de développer un modèle empirique de prédiction de cette augmentation dans le cas d'environnements avec des particules très énergétiques tels des protons spatiaux ou des neutrons de fusion. Grâce à l'identification de certains défauts ponctuels, ces résultats ouvrent la voie à la compréhension des défauts plus complexes générés par les particules plus énergétiques, et donc au développement de modèles de prédiction plus précis, voire de techniques permettant d'éviter la formation de ces défauts dans les futurs capteurs d'images CMOS.

RÉFÉRENCES

1 J.-M. BELLOIR, V. GOIFFON, C. VIRMONTOIS, P. PAILLET, M. RAINE *et al.*, "Dark Current Spectroscopy in Neutron, Proton and Ion Irradiated CMOS Image Sensors: From Point Defects to Clusters", *IEEE Transactions on Nuclear Science*, **64**, p.27-37 (2017).

2 J.-M. BELLOIR, *Spectroscopie du courant d'obscurité induit par les effets de déplacement atomique des radiations spatiales et nucléaires dans les capteurs d'images CMOS à photodiode pincée*, Thèse de doctorat de l'université Paul-Sabatier Toulouse III, soutenue le 18 novembre 2016.

A. Trilla
CEA – DAM
Île-de-France

J. Letort
Institut des sciences de la Terre,
Université de Grenoble

S. Ford, S. Myers
Lawrence Livermore National Laboratory,
États-Unis

INVERSION JOINTE DE DONNÉES RÉGIONALES ET TÉLÉSISMIQUES POUR CONTRAINDRE LA SOURCE SISMIQUE

L'étude des séismes de magnitude modérée, soit entre 4 et 6, est une mission essentielle du Centre national de données, hébergé au CEA – DAM Île-de-France. La détermination des caractéristiques principales d'un événement, notamment celles visant à estimer et à contraindre son origine, naturelle ou anthropique, et son énergie, se fait grâce à l'inversion des formes d'ondes sismiques enregistrées. On parle alors d'inversion de la source sismique. La réduction des incertitudes dans l'estimation des paramètres de la source concentre ainsi les efforts et pousse à l'utilisation de méthodes optimisées d'inversion prenant en compte l'ensemble des jeux de données disponibles. Le séisme de magnitude 5,3 en Corée du Sud du 12 septembre 2016 a servi de cas d'étude dans le développement d'une nouvelle approche d'inversion de la source qui apporte des résultats satisfaisants même dans des régions peu instrumentées.

La compréhension d'un événement sismique se base sur plusieurs paramètres importants tels que sa localisation (latitude, longitude et profondeur), sa magnitude et son mécanisme à la source. L'inversion des formes d'ondes sismiques permet de définir une partie ou l'ensemble de ces paramètres essentiels. Celle-ci utilise habituellement soit des données à distance régionale (< 2 000 km), soit des données à distance télé-sismique (> 3 000 km) impliquant des types d'ondes, des fréquences et des modes de propagation très différents. Les données télé-sismiques sont particulièrement utilisées pour des séismes de forte magnitude. Pour les séismes de magnitude modérée, entre 4 et 6, les données régionales offrent la possibilité d'étudier la source de ces événements en détail. Néanmoins, le nombre de stations sismiques à l'échelle régionale, et/ou l'accès aux données, peut être insuffisant pour permettre une bonne caractérisation des paramètres de la source, d'où l'intérêt de combiner les deux jeux de données. Cela conduit à proposer une optimisation de l'inversion exploitant l'ensemble des données régionales et télé-sismiques : on parle alors d'inversion jointe.

Compte tenu du grand nombre de stations sismiques disponibles et de leur distribution spatiale hétérogène (figure 1), il

est nécessaire de proposer des méthodes automatiques pour sélectionner et inverser celles de meilleure qualité. Plusieurs critères de sélection sont définis en se basant sur des analyses du rapport signal à bruit, sur des méthodes de traitement du signal dites aveugles et sur des comparaisons avec des signaux modélisés à l'aide de modèles de Terre. Ils permettent de ne conserver qu'un ensemble restreint de données de qualité et, ainsi, d'assurer la fiabilité des inversions.

L'inversion jointe est ensuite menée en deux temps. Une recherche en grille des paramètres de la source (magnitude, profondeur et orientation des plans de la faille) est d'abord effectuée, et les données régionales et télé-sismiques sont inversées séparément. Les ondes télé-sismiques sont très sensibles à la profondeur des événements, mais contraignent difficilement le mécanisme de la faille. À l'inverse, les données régionales, principalement composées des ondes de surface de longues périodes, ne permettent pas de caractériser la profondeur aussi finement, mais déterminent des mécanismes très stables, quelle que soit la profondeur testée. Deux fonctions d'optimisation sont déterminées à partir de la comparaison des accords entre les données sismiques observées et celles modélisées à l'aide de modèles

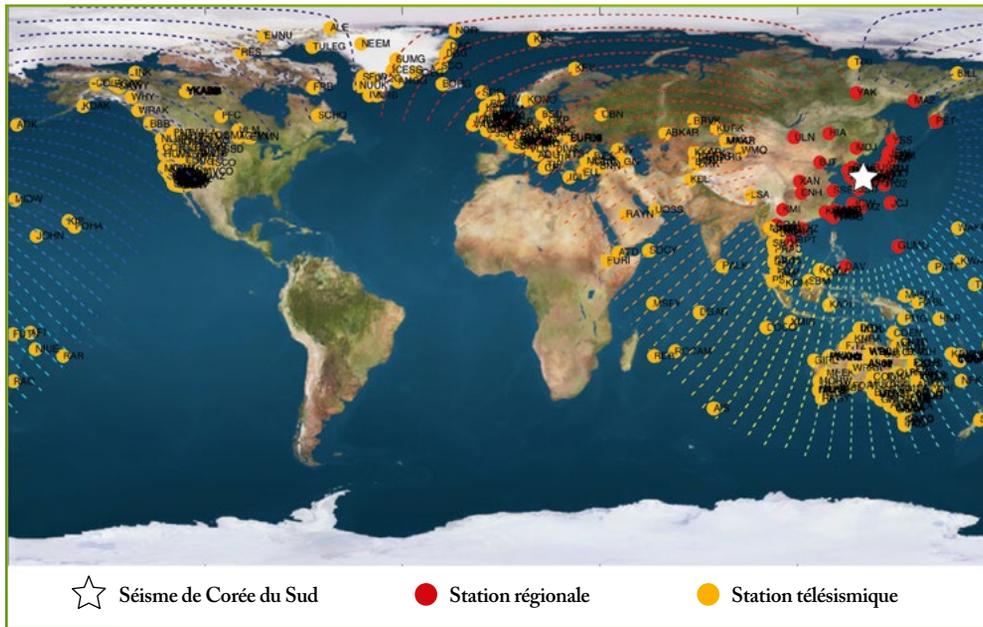


Figure 1
 Carte des stations sismiques régionales (en rouge) et téléseismiques (en jaune) qui ont enregistré le séisme du 12 septembre 2016 en Corée du Sud (étoile blanche). Les stations sont distribuées de façon très hétérogène sur la planète.

de Terre. Plus la fonction d'optimisation est forte, plus les signaux enregistrés aux stations sont correctement représentés par les signaux modélisés. La réunion de ces deux fonctions d'optimisation dessine le front de Pareto **1** qui permet de mettre en évidence les solutions satisfaisant les deux types de données (figure 2). La courbure de ce front identifie un ensemble de résultats cohérents à la fois dans l'estimation de la profondeur et dans celle du mécanisme du séisme. La combinaison de ces solutions fournit la solution dite optimale de l'inversion jointe (figure 2). Cette approche apporte des informations sur la stabilité des inversions et sur l'incertitude des paramètres des sources. Le séisme de

Corée du Sud a ainsi été identifié comme un événement tectonique de magnitude 5,3 sur une faille décrochante **2**. Ce résultat est en accord avec les résultats publiés par des instituts étrangers. Il est également cohérent avec l'orientation du système de failles dans cette région.

L'approche de l'inversion jointe utilisant le front de Pareto est prometteuse, car elle permet de diminuer les incertitudes épistémiques liées aux deux types de données tout en apportant une meilleure contrainte de la source sismique. Des tests supplémentaires sur un événement précurseur et une réplique du séisme de Corée du Sud, de magnitudes inférieures, respectivement 4,8 et 4,3, ont montré que cette nouvelle

méthode fournit de très bonnes estimations des sources **2**. Une application annexe a été réalisée sur des tremblements de terre au Botswana **3**, un pays où l'origine de la sismicité est toujours débattue. Cette application a démontré l'intérêt de l'analyse jointe des données disponibles dans des régions où le nombre de stations à distance régionale est très faible et où il existe un besoin de mieux caractériser les mouvements tectoniques en jeu.

RÉFÉRENCES

- 1** D. NEWBERY, J. E. STIGLITZ, "Pareto inferior trade", *Rev. Econ. Stud.*, **51**, p. 1-12 (1984).
- 2** J. LETORT, A. GUILHEM TRILLA, S. FORD, S. MYERS, "Multiobjective optimization of regional and teleseismic data to constrain the source of the 12 September 2016 Mw 5.4 earthquake in South Korea", *Bulletin of the Seismological Society of America*, **108**, p. 175-187 (2017).
- 3** J. LETORT, A. GUILHEM TRILLA, S. FORD, O. SÈBE, M. CAUSSE, F. COTTON, M. CAMPILLO, G. LETORT, "Teleseismic and regional data analysis for estimating depth, mechanism and rupture process of the 3 April 2017 Mw 6.5 Botswana earthquake and its aftershock (5 April 2017, Mw 4.5)", Abstract S44B-08 presented at 2017 Fall Meeting, American Geophysical Union, New Orleans, LA, 11-15 December 2017.

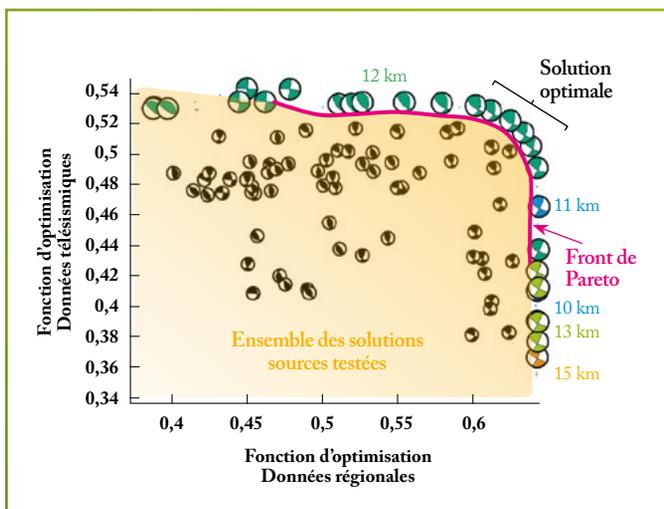


Figure 2
 Résultat de l'inversion jointe obtenue grâce à la combinaison des fonctions d'optimisation des données téléseismiques et régionales. Le front de Pareto (ligne rose) marque les meilleures solutions (en couleur) en fonction de la qualité des résultats sur les données téléseismiques et régionales. Les meilleures solutions se situent à la courbure du front et forment la solution optimale. Certaines sources testées de moindre qualité, sous le front de Pareto, sont représentées dans la zone en jaune qui montre l'étendue des solutions sources testées.

quées de résolution croissante **2**, faisant intervenir un code trop lent en contexte opérationnel. En outre les côtes françaises méditerranéennes peuvent être frappées par un tsunami de source généralement assez proche, et le Cenalt ne dispose que de 70 minutes pour publier les messages d'alerte. Une méthode simple d'estimation aux côtes repose sur une loi d'amplification non linéaire classique nommée loi de Green **3**, qui reste une approximation ne tenant pas compte des variations complexes des géométries littorales. La réponse côtière précise peut être approchée en utilisant un facteur de correction empirique, fonction de la configuration locale (facteur β), qui permet ensuite de caractériser rapidement, en 1 minute environ, l'amplification site par site à partir de modèles peu détaillés **4**.

La limitation de cette méthode est qu'elle exige de nombreuses données historiques pour chaque littoral, afin de paramétrer la correction localement. En Méditerranée, plusieurs séismes tsunamigènes historiques sont répertoriés (figure 1). Cependant, les tsunamis produits, modérés, sont mal documentés. Les paramètres d'amplification sont donc définis au regard de données synthétiques issues de simulations haute résolution. Neuf séismes historiques et synthétiques ont été considérés (marge algérienne et mer Ligure, figure 2). Les hauteurs de tsunami basées sur une fonction de transfert amplificatrice tirée de la loi de Green empiriquement modifiée ont alors été calculées et comparées aux simulations fines.

À la côte, les premiers résultats montrent que l'approximation linéaire fournit des estimations du même ordre de grandeur que les modèles détaillés **1**. D'ouest en est, les

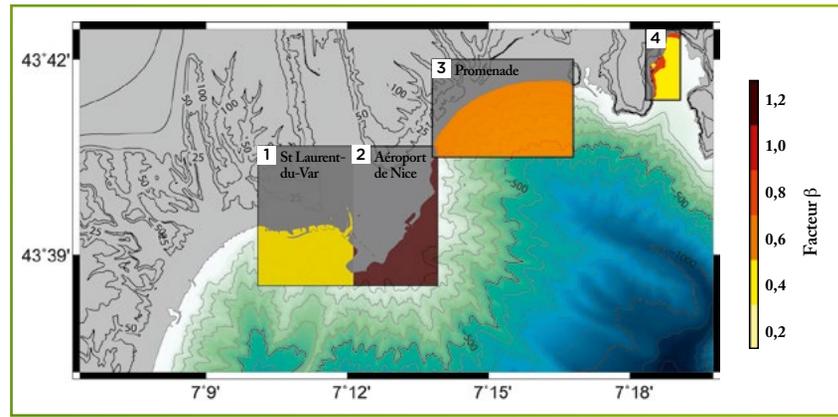


Figure 3

➤ Valeurs du coefficient de correction des amplifications beta (β), régionalisé le long de la Côte d'Azur, déterminées dans cette étude (isocontour bathymétrique 100 m). Les valeurs plus fortes de β soulignent une amplification plus importante (par exemple pour la zone Aéroport de Nice).

calculs révèlent un site d'amplification faible (Saint-Laurent-du-Var, $\beta=0,2$), un domaine fortement amplificateur (aéroport de Nice, $\beta=1,2$), puis à nouveau une zone de faible amplification (promenade des Anglais). Pour le site le plus à l'est (Villefranche-sur-Mer), la réponse complexe conduit à régionaliser les facteurs d'amplification au sein même du domaine (figure 3). Ces différents facteurs d'amplification sont le reflet de la variabilité des pentes sous-marines, de la géométrie des ports et des baies, et des interférences avec des infrastructures maritimes (digues, remblais sur la mer).

Ce travail montre que la loi de Green pure ne peut pas fournir d'estimations satisfaisantes pour tous les points côtiers : des zones fortement amplificatrices peuvent jouxter des sites à amplification faible ou nulle. Inclure un facteur d'amplification dépendant du site permet d'obtenir une meilleure approxima-

tion des prévisions à la côte. La fonction de transfert utilisée pourrait encore comporter des facteurs correctifs supplémentaires pour améliorer les estimations à différentes magnitudes. Cette méthode, implantée au sein des outils du Cenalt, devrait permettre, à terme, de fournir aux autorités de protection civile des estimations côtières rapides à différentes échelles (par exemple départementale, portuaire).

RÉFÉRENCES

1 A. GAILLER, H. HÉBERT, F. SCHINDELÉ, D. REYMOND, "Coastal Amplification Laws for the French Tsunami Warning Center: Numerical Modeling and Fast Estimate of Tsunami Wave Heights Along the French Riviera", *Pure Appl. Geophys.*, p. 1-16 (2017), <https://doi.org/10.1007/s00024-017-1713-9>.

2 H. HÉBERT, A. SLADEN, F. SCHINDELÉ, "Numerical modeling of the great 2004 Indian Ocean tsunami: Focus on the Mascarene Islands", *Bulletin of the Seismological Society of America*, **97**, p. S208-S222 (2007).

3 G. GREEN, "On the motion of waves in a variable canal of small depth and width", *Transactions of the Cambridge Philosophical Society*, **6**, p. 457-462 (1838).

4 A. JAMELOT, D. REYMOND, "New tsunami forecast tools for the French Polynesia tsunami warning system Part II: Numerical modelling and tsunami height estimation", *Pure Appl. Geophys.*, **172**, p. 805-819 (2015).

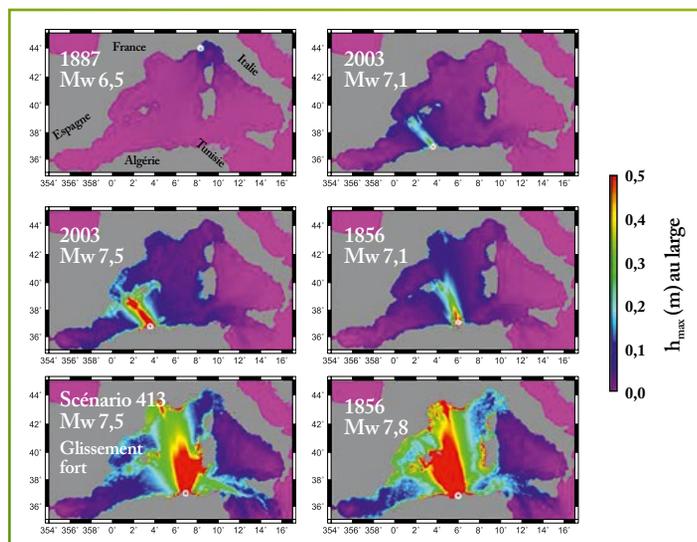


Figure 2

➤ Hauteurs d'eau maximales représentées au large pour 6 scénarios (parmi les 9 utilisés dans l'étude). Les valeurs sont obtenues au large, sur une grille de résolution 2' (3,7 km), après 3 h de propagation. Les cercles blancs représentent l'épicentre des séismes considérés. Les scénarios se réfèrent soit à des épicentres historiques réels (dates indiquées), avec une variation paramétrique sur la magnitude Mw, soit à des épicentres fictifs réalistes.

ADSORPTION DES ISOTOPES DE L'HYDROGÈNE DANS LA ZÉOLITHE NaX : DONNÉES EXPÉRIMENTALES ET MODÉLISATION

Dans le cadre du traitement d'effluents tritiés, la séparation des isotopes de l'hydrogène peut être réalisée par adsorption de type physique, dite physisorption, sur des matériaux adsorbants. Les zéolithes font partie des matériaux présentant les capacités d'adsorption et les propriétés de séparation les plus intéressantes. L'étude expérimentale du processus d'adsorption couplée à la modélisation par dynamique moléculaire des interactions gaz-solide permet dès maintenant de démontrer l'hétérogénéité du processus d'adsorption sur la zéolithe dite NaX, et de mettre en évidence deux types d'adsorbats différemment liés à la structure zéolithique.

La mise en œuvre des différents isotopes de l'hydrogène sous forme gazeuse (hydrogène, deutérium, tritium) au CEA – Valduc implique l'exploitation de divers procédés. Cette exploitation génère des effluents résiduels contenant des espèces tritiées. Le développement d'un procédé de décontamination poussée doit permettre de rendre possible le rejet de ces effluents dans le respect des autorisations réglementaires.

Parmi les techniques de séparation des isotopes de l'hydrogène disponibles, la physisorption par un matériau poreux apparaît comme une alternative prometteuse. Plusieurs études expérimentales montrent ainsi

que dans des conditions cryogéniques, des matériaux inorganiques nanostructurés tels que les zéolithes possèdent la particularité d'adsorber préférentiellement les isotopes lourds de l'hydrogène. Leurs capacités d'adsorption, leurs propriétés de séparation ainsi que leur stabilité sous rayonnement en font d'excellents candidats pour le développement d'un procédé de séparation de type chromatographique.

Afin de développer de nouvelles zéolithes pour la séparation des isotopes de l'hydrogène, il est nécessaire d'approfondir notre compréhension du processus d'adsorption et d'en identifier les paramètres les plus importants. La combi-

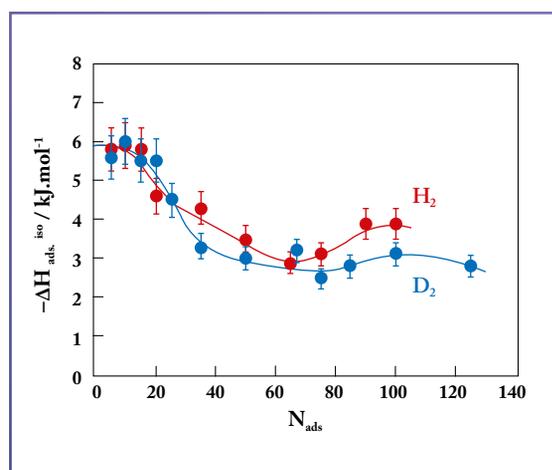


Figure 1

Évolution de la chaleur d'adsorption $-\Delta H$ de H_2 et D_2 , en fonction du nombre N_{ads} de molécules adsorbées par unité cristallographique, au cours du remplissage d'une zéolithe NaX. L'hétérogénéité du processus d'adsorption est mise en évidence avec l'existence de sites d'adsorption dits forts, localisés au niveau des cations sodium. Deux domaines de remplissage apparaissent : un premier domaine, pour $N_{ads} < 20$, qui correspond à l'adsorption des premières molécules qui interagissent directement avec la surface et plus particulièrement avec les cations sodium (Na^+) présents au sein de la structure zéolithique ; un second domaine, pour $N_{ads} > 20$, correspond à l'adsorption de composés avec une interaction qui devient énergétiquement plus faible.

raison de mesures expérimentales sur une zéolithe de référence NaX et de la modélisation moléculaire doit notamment permettre d'avoir accès aux paramètres clés des interactions hydrogène-zéolithe.

Pour caractériser le processus de physisorption d'un point de vue énergétique, des isothermes d'adsorption du dihydrogène H_2 et du dideutérium D_2 sur une zéolithe NaX ont été réalisées à différentes températures comprises entre 30 K et 150 K. Une analyse thermodynamique [2] de ces résultats expérimentaux a conduit à déterminer la variation des enthalpies d'adsorption de H_2 et D_2 au cours du remplissage du matériau, c'est-à-dire en fonction du nombre de molécules adsorbées (figure 1). Deux domaines de remplissage sont clairement mis en évidence. Un premier domaine, compris entre 0 et 20 molécules adsorbées par unité cristallographique, où l'enthalpie d'adsorption est de l'ordre de $-6 \text{ kJ}\cdot\text{mol}^{-1}$ (valeur caractéristique des processus de physisorption). Ce domaine correspond à l'adsorption des premières molécules, qui interagissent plus particulièrement avec les cations sodium (Na^+) présents au sein de la structure zéolithique. Un second domaine, au-delà de 20 molécules adsorbées par unité cristallographique, correspond à l'adsorption de composés avec une interaction qui devient énergétiquement plus faible.

La simulation numérique du processus d'adsorption a été réalisée par un code de dynamique moléculaire, développé en collaboration avec le laboratoire interdisciplinaire Carnot de Bourgogne, qui permet de modéliser simultanément les équilibres et les cinétiques d'adsorption. Le phénomène d'adsorption est décrit à travers l'expression d'un ensemble de potentiels d'interactions intra- et intermoléculaires décrivant la zéolithe NaX [3], l'hydrogène

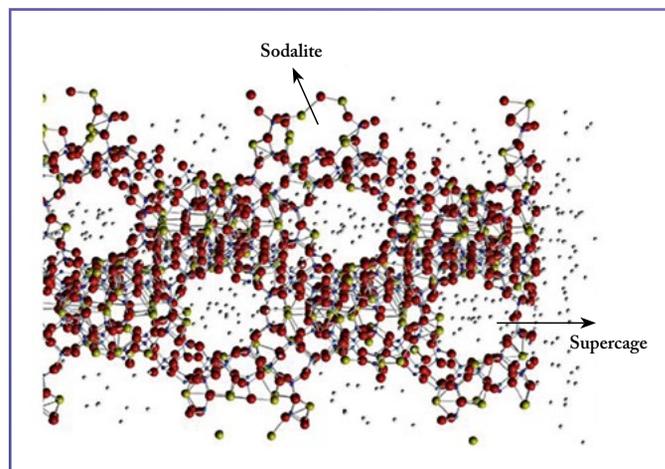


Figure 3

➔ État de la boîte de simulation à l'équilibre d'adsorption : les molécules d'hydrogène n'accèdent pas aux petites cages de sodalite et s'agglomèrent progressivement dans les supercages.

et ses isotopes, ainsi que les interactions H_2 -NaX ou D_2 -NaX [4]. Afin de reproduire le processus d'adsorption, les simulations sont réalisées en exposant une membrane semi-infinie de zéolithe vide à un « réservoir de molécules » contenant les isotopes de l'hydrogène (figure 2). Dans un premier temps, les molécules atteignent la surface externe de la membrane et sont ensuite adsorbées au sein du matériau. L'analyse de la distribution des molécules au sein du matériau adsorbant montre qu'au cours du remplissage les molécules hydrogénées ont tendance à s'agglomérer au voisinage des cations compensateurs de charges Na^+ dans les supercages de la zéolithe (figure 3). Lorsque le matériau est saturé, il apparaît que la phase adsorbée s'organise de telle sorte que la formation d'une structure caractéristique d'une phase liquide est mise en évidence [2].

La combinaison des données expérimentales et de la modélisation, au travers de la variation de l'enthalpie d'adsorption (figure 1) et de la localisation des espèces hydrogénées dans les supercages (figure 3),

permet de mettre en évidence l'existence de deux types d'interaction de l'hydrogène adsorbé au sein de la zéolithe NaX. La nature des cations représente un des paramètres essentiels pour la définition d'une zéolithe sélective et répondant spécifiquement à nos besoins d'exploitation. De récents travaux montrent que le remplacement des cations Na^+ par des cations Li^+ , K^+ , Mg^{2+} , Mn^{2+} ou Ba^{2+} peut, dans certains cas, améliorer significativement les performances de séparation (facteur de séparation D_2/H_2 multiplié par 2 à faible remplissage).

RÉFÉRENCES

- 1 D. BASMAJIAN *et al.*, "Adsorption equilibria of hydrogen, deuterium, and their mixtures", *Can. J. Chem.*, **38**, p. 141-148 (1960).
- 2 J.-M. SALAZAR, S. LECTEZ, C. GAUVIN, M. MACAUD *et al.*, "Adsorption of hydrogen isotopes in the zeolite NaX: Experiments and simulations", *Int. J. Hydrogen Energy*, **42**, p. 13099-13110 (2017).
- 3 M. JEFFROY *et al.*, "Molecular simulation of zeolite flexibility", *Mol. Simul.*, **40**, p. 6-15 (2014).
- 4 E. PANTATOSAKI *et al.*, "Combined atomistic simulation and quasielastic neutron scattering study of the low-temperature dynamics of hydrogen and deuterium confined in NaX zeolite", *J. Phys. Chem. B*, **112**, p. 11708-11715 (2008).

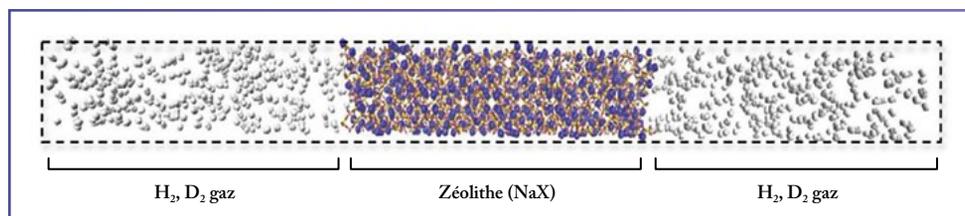


Figure 2

➔ Configuration initiale de la boîte de simulation numérique représentant une membrane de zéolithe NaX en équilibre avec une phase gaz composée d'isotopes de l'hydrogène.

J. Avice,
C. Boscher, P. Belleville,
H. Piombini
CEA – Le Ripault

G. Vaudel, G. Brotons,
V. Juvé, M. Edely, P. Ruello
Institut des molécules et des matériaux du Mans,
UMR 6283 CNRS – Le Mans Université

V. Gusev
Laboratoire d'acoustique,
UMR 6613 CNRS –
Le Mans Université

C. Sanchez
Laboratoire de chimie de la matière
condensée, Collège de France, Paris

C. Méthivier
Laboratoire de réactivité de surface,
UMR 7197 CNRS – Sorbonne Université, Paris

CARACTÉRISATION DES NANOCONTACTS D'UN REVÊTEMENT OPTIQUE DU LASER MÉGAJOULE

Les revêtements antireflet des composants optiques du Laser Mégajoule sont réalisés en utilisant le procédé sol-gel. Ces revêtements sont constitués d'un empilement aléatoire de nanoparticules de silice d'environ 10 nm de diamètre. L'article 1 décrit le suivi des propriétés physico-chimiques de ces revêtements grâce à un ensemble de caractérisations allant de la solution sol-gel initiale jusqu'à la mesure des « forces de contact » entre nanoparticules dans la couche. Cette étude fondamentale d'un procédé très robuste permet d'avoir un contrôle total de l'ensemble du processus en termes de propriétés physiques et de reproductibilité, et de minimiser à terme les coûts de production et de maintenance des optiques du Laser Mégajoule.

Les composants optiques du Laser Mégajoule sont nombreux et variés : lentilles, hublots, lames, miroirs, cristaux, etc. Afin de limiter les pertes optiques par réflexion de chaque composant travaillant en transmission et, ainsi, optimiser l'énergie laser incidente dans la chambre d'expérience, il est indispensable de déposer sur les faces de ces optiques un film antireflet, constitué de nanoparticules de silice, qui annule les réflexions parasites. La préparation des films de nanoparticules de silice est schématisée sur la figure 1. Ces films sont déposés sur

des composants optiques en utilisant la technique du *dip-coating* (trempage-retrait d'un substrat dans la solution de silice colloïdale). La tenue mécanique du film est améliorée par un post-traitement à l'ammoniaque qui permet de créer une interconnexion entre nanoparticules de silice par liaisons covalentes.

La transformation des nanocontacts d'interaction faible en contacts covalents a été suivie et contrôlée grâce à différentes méthodes lors du procédé. Tout d'abord, la spectroscopie infrarouge a été utilisée pour montrer l'évolution de la

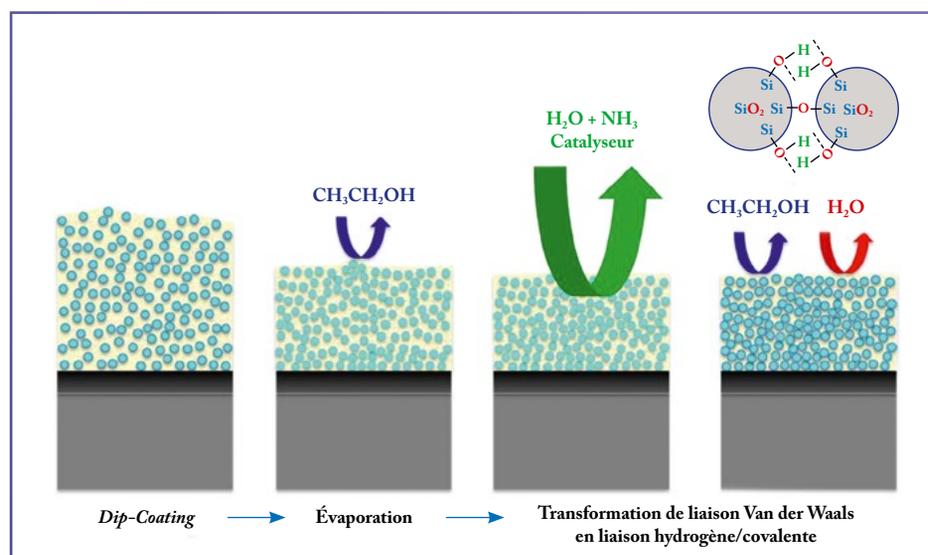
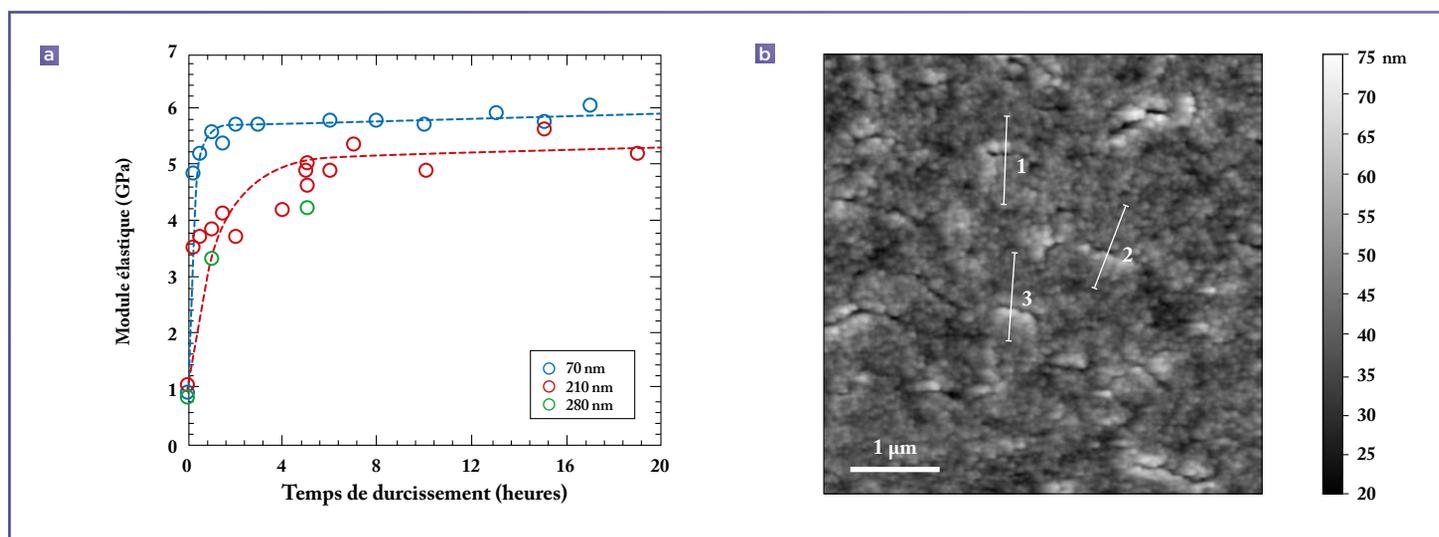


Figure 1

➔ Schéma du procédé de fabrication d'une couche mince à base de nanoparticules incluant les étapes de séchage et de durcissement à base d'ammoniaque contrôlant la transformation des nanocontacts Van der Waals en nanocontacts covalents.

Figure 2

(a) Évolution du module élastique du film colloïdal en fonction du temps de durcissement et pour trois épaisseurs différentes : un temps long de durcissement permet de renforcer les propriétés mécaniques jusqu'à un facteur 5. (b) Visualisation à trois dimensions par microscopie à force atomique de nanofissures (sections 1, 2 et 3) ; les nanofissures sont plus présentes dans les films épais dont le module élastique est plus faible comme indiqué sur la figure 2a.



nature des liaisons qui régissent l'énergie de surface des nanostructures. Le passage de liaisons faibles à des liaisons hydrogène, voire covalentes, a été mis en évidence et s'accompagne de variations de la balance hydrophile/hydrophobe du film optique, induisant une modification de surface. Une autre technique non destructive d'opto-acoustique ultrarapide (laser pompe-sonde femtoseconde) a été employée afin d'évaluer de manière quantitative l'importance de la nature des nanocontacts (Van der Waals versus covalents) et les conséquences à l'échelle macroscopique sur les propriétés mécaniques des films (renforcement mécanique). Cette technique repose sur la génération et la détection d'ondes acoustiques ayant des fréquences de quelques gigahertz qui viennent exciter les modes propres de vibration du film. On mesure la vitesse du son dans le film et, connaissant son épaisseur mécanique et sa densité, on en déduit le module élastique de la couche. Un point important dans ces travaux a été d'évaluer ce module tout au long du procédé de post-traitement chimique à l'ammoniaque, c'est-à-dire de la transition Van der Waals/covalence. La valeur du module élastique passe ainsi de 1 GPa pour des contacts de type Van der Waals à 5-6 GPa pour des contacts covalents entre nanoparticules (figure 2a). Un régime asymptotique de ces interconnexions tridimensionnelles du réseau de nanoparticules intervient

après un temps de durcissement à l'ammoniaque de 2 à 8 h selon l'épaisseur du film considérée (de 70 nm à 280 nm dans cette étude). Il apparaît également que les films épais possèdent un module plus faible que ceux des couches fines. Cette propriété s'explique par l'existence de défauts dans les empilements épais de nanoparticules qui ont pu être visualisés en microscopie à force atomique (figure 2b), mais ont été aussi quantifiés par analyse de la diffusion optique en spectroscopie visible.

Au-delà de la combinaison de plusieurs techniques qui offre un regard tout à fait complet et original sur les propriétés physico-chimiques de ces nanostructures, cette étude a permis également de démontrer qu'au niveau industriel il est possible de raccourcir de plusieurs heures l'étape de post-traitement des optiques du Laser Mégajoule.

Cette étude fondamentale d'une procédure très robuste démontre qu'il existe beaucoup de physique et de chimie derrière l'ingénierie de préparation de telles couches minces colloïdales. En utilisant un grand

nombre de méthodes spectroscopiques et analytiques, les propriétés mécaniques (augmentation d'un facteur 5) et les propriétés optiques des couches antireflet ont été optimisées et les mécanismes physico-chimiques responsables de telles améliorations ont été analysés en détail. Le processus de traitement à l'ammoniaque entraîne une réticulation efficace entre les particules de nanosilice formant la couche poreuse qui s'en trouve ainsi fortement consolidée. Cette connaissance permet non seulement d'avoir un contrôle total de l'ensemble du processus en termes de propriétés physiques et de reproductibilité (indice, épaisseur, temps de durcissement, etc.), mais aussi de minimiser à terme les coûts de production et de maintenance des optiques du Laser Mégajoule, grâce à l'optimisation de la durée de durcissement (figure 2b). Ainsi, cette stratégie peut être efficacement transférée à un grand nombre de revêtements constitués de nanoparticules d'oxydes métalliques (ZrO_2 , TiO_2 , Al_2O_3 , etc.) afin d'améliorer leur robustesse et leur qualité optique.

RÉFÉRENCES

- 1 J. AVICE *et al.*, "Controlling the Nanocontact Nature and the Mechanical Properties of a Silica Nanoparticle Assembly", *J. Phys. Chem. C.*, **121**, p. 23769-23776 (2017).

APPLICATION DES FRAGMENTS GÉOMÉTRIQUES AU CALCUL DE LA SOLUBILITÉ DANS L'OCTANOL

La méthode des fragments géométriques est une procédure générale pour évaluer les propriétés des liquides et des solides moléculaires à partir des formules chimiques des espèces dont ils sont constitués.

Elle s'applique plus particulièrement aux quantités déterminées par les interactions entre molécules. Elle a par exemple permis des progrès récents dans le calcul d'une grandeur d'intérêt pratique considérable : la solubilité des composés organiques dans l'octanol.

Connaître les propriétés des substances chimiques aide à se prémunir contre les risques éventuels liés à leur utilisation ou à choisir les composés les plus adaptés pour une application donnée. Les études expérimentales étant coûteuses et souvent difficiles, on manque de données pour la grande majorité des composés commercialisés, sans compter le fait qu'il serait également très utile pour les chimistes de connaître les propriétés de composés encore inconnus, afin de savoir sur quelles cibles concentrer les efforts de synthèse. Des simulations moléculaires peuvent dans certains cas pallier cette carence. Cependant, elles nécessitent des moyens inaccessibles à la majorité des ingénieurs en manque de données. De plus, la fiabilité des résultats est limitée, du fait par exemple des incertitudes sur les forces interatomiques ou de configurations atomistiques non représentatives. Il serait préférable de pouvoir calculer les propriétés d'une phase condensée sur la base d'un minimum de données, si possible uniquement à partir des formules développées des molécules.

En vue d'aboutir à de tels outils prédictifs, deux approches sont couramment utilisées. La première, dite additive, consiste à représenter la propriété considérée à l'aide de contributions associées aux différentes parties qui constituent la molécule. La seconde, désignée par le sigle anglais QSPR, signifiant relation quantitative structure-pro-

priété, consiste à la relier de manière empirique à des grandeurs appelées descripteurs, directement déduites des formules des molécules. Si l'approche QSPR est souvent considérée comme supérieure aux méthodes additives, un examen approfondi de la littérature révèle que cette idée résulte de l'utilisation erronée du principe d'additivité, certains auteurs négligeant la nécessité de modéliser des grandeurs intermédiaires ou de prendre en compte la molécule dans sa totalité.

De plus, ce principe n'est pas exploité de manière optimale par les deux principaux types de méthode additive, qui reposent sur des termes associés respectivement aux atomes et aux groupes fonctionnels. L'additivité atomique est d'un intérêt très limité, car elle ignore l'environnement des atomes. En revanche, l'additivité des groupes pose un problème inverse : le nombre de groupes fonctionnels est si élevé qu'il est difficile de déterminer les contributions de chacun d'eux. De plus, il est paradoxal de modéliser des propriétés physiques déterminées par les forces entre molécules à partir de la notion de groupe fonctionnel, destinée plutôt à rendre compte de leur réactivité.

Le CEA – Le Ripault a développé une approche additive basée sur des considérations purement géométriques. Plus précisément, cette méthode, dite des fragments géométriques, suppose que la contribution aux forces intermoléculaires d'un

atome dépend de sa nature chimique et de son accessibilité, elle-même fonction du nombre de voisins auxquels l'atome est lié et de leurs rayons **1**. Elle est conçue pour les propriétés déterminées par les forces intermoléculaires, comme la densité ou l'enthalpie de sublimation, pour lesquelles elle fournit les méthodes de calcul les plus fiables disponibles à ce jour **1,2**. Elle paraît donc prometteuse pour des propriétés d'intérêt pratique majeur, comme la solubilité des substances dans les liquides, nécessaire aussi bien pour concevoir les procédés de fabrication de l'industrie chimique que pour comprendre le devenir des molécules ingérées par l'organisme ou rejetées dans l'environnement.

La solubilité dans l'octanol à température ambiante, notée S_{oct} , est particulièrement importante pour ces dernières applications. Différentes méthodes ont été publiées pour l'évaluer, notamment une méthode de groupes ainsi qu'une large gamme de modèles QSPR. Les meilleurs résultats ont été obtenus par une technique dite Random Forest (RF). Ce modèle, qui s'apparente à une boîte noire du fait de la complexité des relations mathématiques sous-jacentes, met en jeu 86 descripteurs et un nombre encore plus élevé de paramètres empiriques **3**.

Par rapport à ces précédents modèles, la technique des fragments géométriques présente une fiabilité comparable ou supérieure. De plus, le modèle associé est plus simple et transparent, avec 19 paramètres et 18 variables représentant les contributions des différents fragments à l'enthalpie libre

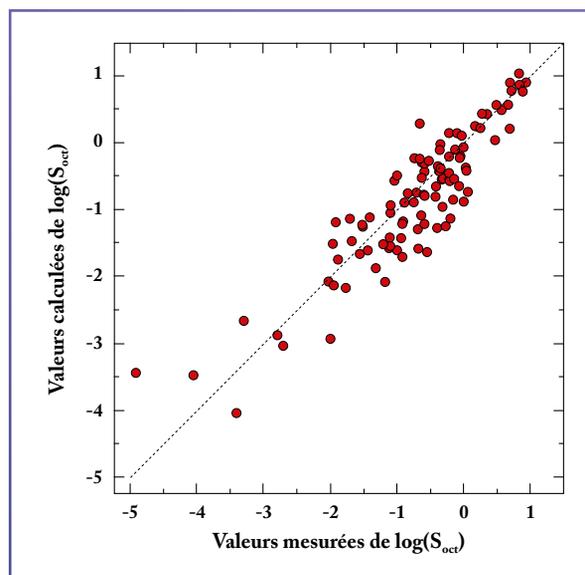


Figure 2

➔ Logarithme de la solubilité S_{oct} exprimée en moles/litre: les valeurs en ordonnée ont été calculées par la méthode des fragments géométriques, après ajustement de ses paramètres. Les valeurs en abscisse sont issues de mesures. L'accord entre les valeurs prédites et mesurées est satisfaisant comparé aux écarts observés avec les autres méthodes d'estimation.

de dissolution **4**. Un avantage notable par rapport à l'approche QSPR réside dans le fait que la cohérence des paramètres est aisément vérifiable. Par exemple, on peut vérifier (figure 1) que la contribution à la solubilité d'un atome de carbone augmente lorsqu'on remplace un de ses voisins par un atome d'hydrogène, comme attendu théoriquement.

Par ailleurs, pour les solides, la solubilité dans l'octanol S_{oct} dépend de l'entropie associée à la transition solide-liquide, souvent supposée constante (règle de Walden). Les fragments géométriques permettent de s'affranchir de cette hypothèse. Combinés au point de fusion expérimental, ils conduisent à d'excellents résultats (figure 2)

aussi précis que les données déduites de mesures indirectes **4**.

Ces résultats confirment la pertinence et la généralité de la notion de fragment géométrique pour la modélisation des propriétés des phases condensées. Diverses améliorations sont envisageables, en introduisant par exemple des charges atomiques pour prendre en compte de manière plus explicite la distribution électronique, ou une fonction d'écrantage commune à tous les atomes, en vue de réduire le nombre de paramètres empiriques.

RÉFÉRENCES

- 1** D. MATHIEU *et al.*, "Reliable and Versatile Model for the Density of Liquids Based on Additive Volume Increments", *Ind. Eng. Chem. Res.*, **55**, p. 12970-12980 (2017).
- 2** D. MATHIEU, "Simple Alternative to Neural Networks for Predicting Sublimation Enthalpies from Fragment Contributions", *Ind. Eng. Chem. Res.*, **51**, p. 2814-2819 (2012).
- 3** M. A. BUONAIUTO *et al.*, "Prediction of 1-Octanol Solubilities Using Data From the Open Notebook Science Challenge", *Chem. Cent. J.*, **9**, 50 (2015).
- 4** D. MATHIEU, "Solubility of Organic Compounds in Octanol: Improved Predictions Based on the Geometrical Fragment Approach", *Chemosphere*, **182**, p. 399-405 (2017).

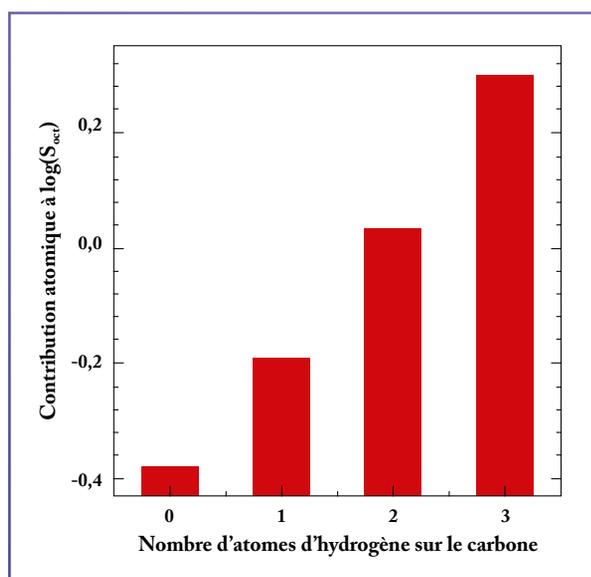


Figure 1

➔ Contributions d'un atome de carbone saturé (relié seulement par des liaisons simples) au logarithme de la solubilité dans l'octanol S_{oct} d'une molécule. Ces valeurs constituent les paramètres ajustables de la méthode des fragments géométriques. Le fait qu'elles augmentent régulièrement avec le nombre d'atomes d'hydrogène attachés à l'atome conforte leur validité ainsi que la pertinence du modèle.

J. Aupiais
CEA – DAM
Île-de-France

S. Sauge-Merle, D. Lemaire,
C. Berthomieu
CEA – Cadarache

R. W. Evans
Brunel University,
Royaume-Uni

INTERACTION DU PLUTONIUM AVEC UNE PROTÉINE DU SANG, LA TRANSFERRINE

La transferrine humaine est responsable du transport du fer dans l'organisme. Elle possède aussi une très grande affinité pour le plutonium tétravalent. La mesure de cette affinité, appelée constante de complexation, n'avait pas été revue depuis une détermination unique en 1991. À l'époque, il avait été conclu que l'affinité du plutonium était identique à celle du fer. Mais cette première détermination devait être validée en raison de l'adoption de plusieurs hypothèses difficiles à vérifier. Pour cela, le couplage entre une électrophorèse capillaire et un spectromètre de masse (ICPMS) a été utilisé au CEA – DAM Île-de-France. Il apparaît de façon univoque que la constante est en réalité 10 000 fois supérieure à celle du fer.

Le plutonium est un des actinides les plus radiotoxiques qui soient. Bien qu'il ne possède aucune fonction physiologique connue, il peut être retenu par l'organisme et induire des effets nocifs. En particulier, il s'accumule dans les os et le foie avant d'être partiellement excrété par les urines et les fèces. Il est aussi transporté dans le sang par une protéine abondante : la transferrine sérique. La transferrine sérique (Tf) est une glycoprotéine caractérisée par une masse de 80 000 daltons et constituée d'une unique chaîne polypeptidique de 679 acides aminés repliée en deux lobes, dits lobe N et lobe C. Ils sont chacun constitués de deux domaines distincts capables de se rapprocher et de s'éloigner l'un de l'autre. Chaque lobe de la transferrine possède un site de complexation du fer (III), situé à la charnière entre les deux domaines du lobe. La complexation du fer par la transferrine est particulière : elle requiert obligatoirement un anion additionnel appelé anion synergique. Cet anion est le bicarbonate HCO_3^- , il permet aux atomes de fer d'entrer dans les deux cavités de la protéine avec une meilleure efficacité (d'autres anions peuvent jouer ce rôle comme l'anion nitrilotriacétate NTA). En l'absence de fer, la transferrine a ses deux lobes ouverts. En présence de fer, les deux lobes se rapprochent alors l'un de l'autre. Le complexe Fe_2Tf ainsi formé présente donc une configuration dite fermée. Les

cellules cibles du fer (III) possèdent des récepteurs membranaires spécifiques (TR) du complexe Fe_2Tf qui, à pH physiologique, reconnaissent uniquement la forme complètement fermée de la protéine. Le complexe $\text{TR-Fe}_2\text{Tf}$ ainsi formé est internalisé dans la cellule par un phénomène d'endocytose. Après relargage du fer, la transferrine regagne le sérum par un phénomène d'exocytose. La durée d'un cycle est d'environ 4 minutes. La concentration de la transferrine dans le sérum ($30 \mu\text{M}$) est en excès par rapport au fer, de sorte que seul 30% de la protéine est saturé en fer. La molécule de transferrine a une durée de vie moyenne de huit jours et peut participer à 100 cycles environ.

Bien que la fonction physiologique principale de la transferrine soit de véhiculer le fer vers les cellules, cette dernière possède hélas des affinités pour d'autres métaux, plus ou moins toxiques, comme le chrome, le cuivre, le titane, le vanadium, le ruthénium, l'aluminium, le gallium, les lanthanides, les actinides, etc.

Des résultats récents ont montré que le plutonium utilisait le même mécanisme d'internalisation du fer dans une configuration où un atome de plutonium est localisé sur le lobe C et un atome de fer sur le lobe N **1**. Cette configuration particulière est topologiquement très proche du complexe Fe_2Tf . Néanmoins, l'internalisation du plutonium est conditionnée

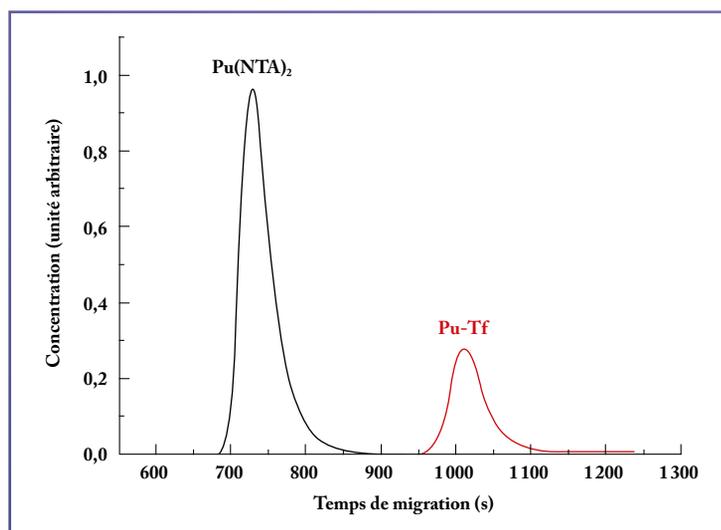


Figure 1

➔ Électrophorogrammes d'espèces de plutonium. L'acide nitrilotriacétique (NTA) est utilisé ici pour protéger Pu^{4+} de l'hydrolyse. En augmentant la concentration en transferrine (Tf), la surface des deux pics va évoluer (augmentation de la surface du pic Pu-Tf et diminution de la surface du pic $\text{Pu}(\text{NTA})_2$). Cette variation des surfaces des pics permet de calculer la constante de complexation entre le plutonium et la transferrine.

par la complexation effective et préalable par la transferrine et dépend de la présence d'autres métaux qui peuvent entrer en compétition. Or, nous avons remarqué que la force de la constante de complexation entre le plutonium et la transferrine, déterminée par L. Yule en 1991 [2] et utilisée par plusieurs auteurs pour fabriquer des complexes Pu-Tf, n'avait jamais été validée par d'autres techniques.

Pour la première fois, une technique couplant l'électrophorèse capillaire (*Capillary electrophoresis* ou CE) avec un spectromètre de masse (ICPMS, pour *Inductively coupled plasma mass spectrometry*) a été utilisée pour déterminer la constante de complexation entre la transferrine et le plutonium. La technique CE-ICPMS est une technique à très haute sensibilité qui préserve les espèces chimiques (spéciation) et permet de quantifier l'affinité d'un ligand pour un métal. Par exemple, l'électrophorogramme de la figure 1 montre que l'électrophorèse capillaire est capable de séparer deux espèces chimiques distinctes contenant toutes les deux un atome de plutonium. Cette séparation physique des espèces est rendue possible, car les complexes formés sont assez stables pour ne pas se dissocier pendant la séparation électrophorétique.

En réalisant les expérimentations à un pH proche du pH physiologique, la valeur de cette constante a pu être déterminée. Contrairement à ce qu'amenait à penser l'unique valeur disponible depuis 1991, le CEA – DAM Île-de-France a montré de manière univoque que, à pH physiologique, le plutonium n'est pas identique au fer, mais que la transferrine a 10 000 fois plus d'affinité pour le plutonium que pour le fer

(figure 2). Cette différence peut paraître grande mais elle traduit simplement les évolutions technologiques qui ont permis de lever les difficultés rencontrées en 1991. Ces résultats ont fait l'objet de la page de couverture dans le journal spécialisé *Dalton Transactions* [3].

La précision de la valeur obtenue permet maintenant d'étudier de nouvelles protéines et de comparer leurs affinités relatives. D'ores et déjà engagées avec des protéines comme la calmoduline et la fétuine, ces études permettront de comprendre la physiologie du plutonium.

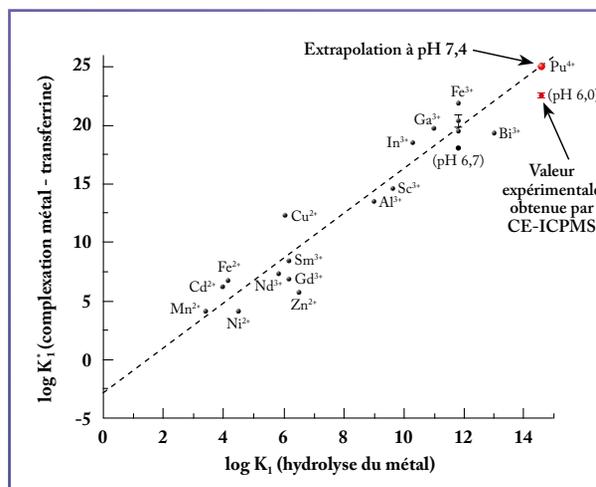


Figure 2

➔ Corrélation linéaire entre la constante de complexation K_1 métal-transferrine à pH physiologique (pH 7,4) et la constante de première hydrolyse du métal. La corrélation linéaire a été observée par Sun *et al.* avec un nombre important de métaux [4]. Cette corrélation permet de prédire que la constante de complexation plutonium-transferrine, à pH physiologique, sera $\log K_1 = 25,0$, soit environ 10 000 fois supérieure à celle du fer ($\log K_1 = 20,4$). En raison des difficultés à stabiliser le plutonium contre l'hydrolyse, la valeur expérimentale par CE-ICPMS a été obtenue pour Pu-Tf à pH 6,0. Elle est cohérente avec la valeur extrapolée, car il est connu que la constante K_1 augmente avec le pH, comme on peut le constater sur cette figure pour le fer à pH 6,7 et 7,4.

RÉFÉRENCES

- 1 M. P. JENSEN *et al.*, "An iron-dependent and transferrin-mediated cellular uptake pathway for plutonium", *Nat. Chem. Biol.*, **7**, p. 560-565 (2011).
- 2 L. YULE, *A comparison of the binding of plutonium and iron to transferrin and citrate*, Thèse de doctorat soutenue le 29 octobre 1991, University of Wales, Cardiff.
- 3 S. SAUGE-MERLE *et al.*, "Revisiting binding of plutonium to transferrin by CE-ICP-MS", *Dalton Trans.*, **46**, p. 1389-1396 (2017).
- 4 H. SUN, H. LI, P. J. SADLER, "Transferrin as a metal ion mediator", *Chem. Rev.*, **99**, p. 2817-2842 (1999).

TACO : COMPILATION ET GÉNÉRATION DE CODE D'EXPRESSIONS TENSORIELLES

L'algèbre tensorielle est un puissant outil de modélisation avec des applications dans la *machine learning*, l'analyse de données, l'ingénierie et la simulation numérique. Les tenseurs sont souvent creux (avec de nombreuses composantes nulles) et les expressions de calcul complexes doivent être implémentées dans un noyau unique pour des raisons de performance et de gestion mémoire. Les développeurs doivent alors optimiser manuellement des noyaux pour chacune des expressions d'intérêt avec des tenseurs associant des dimensions denses et creuses. L'explosion combinatoire du nombre d'expressions potentielles rend difficiles l'implémentation et l'optimisation de chacune. L'approche générative proposée dans le compilateur *taco*, acronyme de *tensor algebra compiler* (voir <http://tensor-compiler.org>) permet de générer automatiquement du code parallèle compétitif avec les meilleurs noyaux optimisés manuellement et surtout pour un nombre infini d'expressions tensorielles.

Les expressions d'algèbre linéaire sont au cœur des performances des logiciels de simulation du CEA-DAM. Les tenseurs sont une généralisation des vecteurs et matrices à tout nombre de dimensions, ils permettent d'effectuer des calculs multilinéaires **1**. De nombreuses applications concernent des tenseurs creux, par exemple le Amazon Reviews Tensor (3 dimensions : utilisateurs × produits × avis) peut potentiellement contenir 107 exaoctets (10^{18} octets) composantes, dont seulement 13 gigaoctets (10^9 octets) sont non nuls. La **figure 1** illustre, sur une expression simple, la complexité d'itération sur des indices creux pour optimiser le nombre d'opérations nécessaires à l'obtention du résultat.

Le nombre infini d'expressions tensorielles simples ou composées ainsi que les différences entre les architectures matérielles cibles sont les raisons du choix d'une approche par compilation retenue dans *taco*, acronyme de *tensor algebra compiler* **2**. Son implémentation nécessite les trois techniques suivantes :

- la définition du stockage des tenseurs se fait en spécifiant pour chacune de ses dimensions si elle est pleine (*D-dense*) ou creuse (*S-sparse*) et en choisissant l'ordre de ses dimensions. Ainsi le format CSR (*Compressed sparse row*) usuel pour les matrices creuses est assimilable à DS (*Dense-Sparse*). Un tenseur de dimension 4 tel que DSDD permet de stocker des matrices par blocs ;

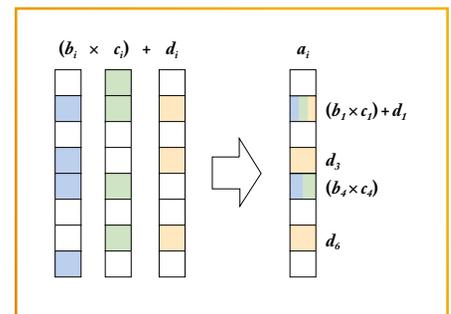


Figure 1

➤ Calcul creux de $a_i = b_i * c_i + d_i$. Les couleurs dans le vecteur résultat montrent quelles opérations et valeurs des opérandes sont combinées pour chaque valeur résultat non nulle.

- les graphes d'itérations sont la représentation intermédiaire du compilateur décrivant les espaces d'itération sur les valeurs non nulles d'un tenseur. Ce concept générique permet de représenter aussi bien des expressions simples telles qu'un SpMV (*Sparse matrix-vector multiplication*) que des expressions composées complexes comme le MTTKRP (*Matrix-tensor times Khatri-Rao product*) ;
- les treillis de fusion relient les opérations avec les espaces d'itération. Si deux tenseurs sont multipliés (resp. additionnés) alors la fusion est une conjonction (\wedge) (resp. disjonction \vee), car il faut que les deux opérandes (resp. une seule) soient non nulles pour que le résultat le soit aussi (**figure 2**).

À partir d'une expression écrite en notation tensorielle **1**, le compilateur *taco* s'ap-

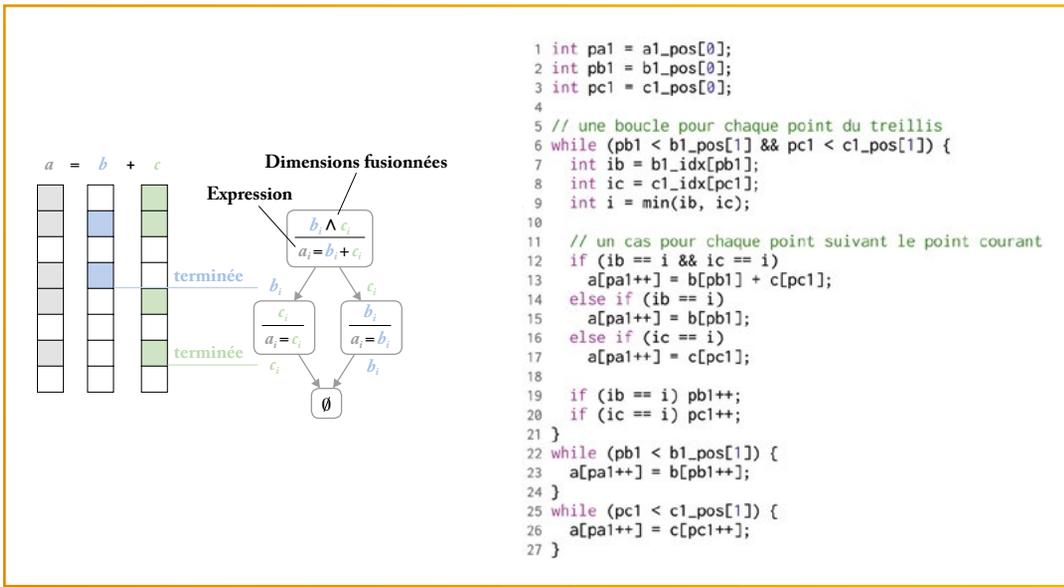


Figure 2
 ➤ Exemple d'une addition de vecteurs creux ($a_i = b_i + c_i$). La partie centrale montre le treillis de fusion de cette expression. La partie droite montre le code généré automatiquement par *taco* pour cette expression.

puie sur ces trois concepts pour générer du code optimisé parallèle. L'algorithme *two-way merge* 3 est utilisé pour optimiser les parcours des indices des dimensions creuses fusionnées (figure 2).

L'évaluation des performances du code généré démontre l'efficacité de cette approche tant sur des expressions simples comme un SpMV de forme $b_i = A_{ij} \times x_j$ (figure 3a) que sur des expressions complexes impliquant des tenseurs d'ordre élevé comme un MTTKRP de forme $A_{ij} = B_{ikl} \times C_{kj} \times D_{lj}$. Elle permet surtout d'éliminer le compromis entre performance et exhaustivité des bibliothèques existantes. La figure 3b montre pour l'expression $A_{ij} = B_{ij} + C_{ij} + D_{ij}$ les gains

de performance obtenus avec *taco* contre les bibliothèques qui implémentent cette expression. Le parallélisme pour des architectures à mémoire partagée est assuré par l'ajout de directives d'interfaces de programmation parallèle (telles que OpenMP ou Cilk) au niveau des boucles externes. Les travaux de recherche en cours portent sur la prise en compte de nouveaux formats de stockage et d'un niveau de parallélisme distribué.

La suite logicielle *taco* est composée de trois couches logicielles successives et utilisables indépendamment : une bibliothèque C++, un outil en ligne de commande et une interface web. L'outil en ligne de commande permet de comparer les perfor-

mances des noyaux de code générés, d'étudier l'impact du choix des formats et d'optimiser interactivement le code généré 4.

Le compilateur *taco* propose une approche générative dédiée à l'algèbre tensorielle et pour une infinité de formats de stockage. En s'appuyant sur ce compilateur, on peut construire des langages, des bibliothèques et des logiciels de simulation manipulant des tenseurs denses et creux sans écrire manuellement le code ni sacrifier les performances.

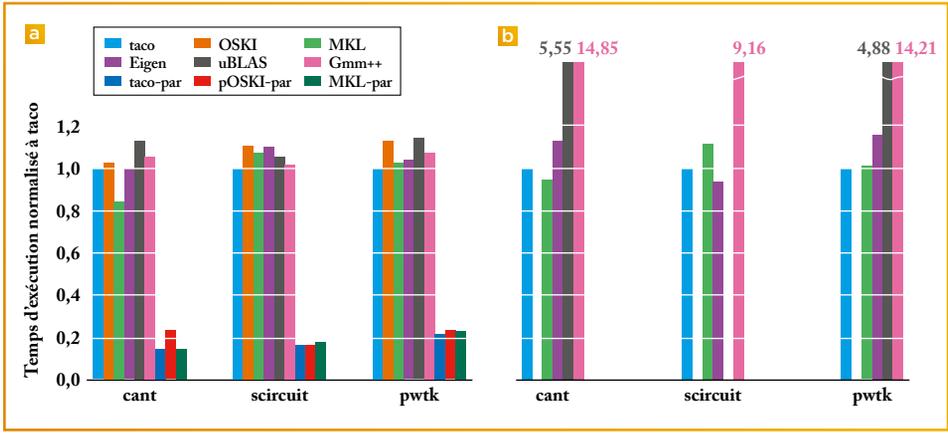


Figure 3
 ➤ (a) Temps d'exécution normalisés par rapport à *taco* d'un SpMV de forme $b_i = A_{ij} \times x_j$, obtenus avec des bibliothèques d'algèbre linéaire pour un ensemble de matrices; -par indique des temps d'exécution parallèle. Les temps d'exécution du code généré automatiquement par *taco* sur un ensemble de matrices (cant, scircuit, pwtk) sont comparables à ceux obtenus avec les codes optimisés manuellement des meilleures bibliothèques (MKL, OSKI, Eigen). (b) Comparaison de performances pour l'expression $A_{ij} = B_{ij} + C_{ij} + D_{ij}$, démontrant l'efficacité de *taco* sur des expressions tensorielles plus complexes.

RÉFÉRENCES

- 1 G. RICCI-CURBASTRO, T. LEVI-CIVITA, « Méthodes de calcul différentiel absolu et leurs applications », *Math. Ann.*, **54**, p. 125-201 (1901).
- 2 F. KJOLSTAD, S. KAMIL, S. CHOU, D. LUGATO, S. AMARASINGHE, "The Tensor Algebra Compiler", *Proc. ACM Program. Lang.*, Vancouver, Canada, Oct. 22-27, 2017, **1**, Issue OOPSLA, Article 77 (2017).
- 3 D. KNUTH, *The art of computer programming: sorting and searching*, Pearson Education (1973).
- 4 F. KJOLSTAD, S. CHOU, D. LUGATO, S. KAMIL, S. AMARASINGHE, "taco: A Tool to Generate Tensor Algebra Kernels", *Proc. 32nd IEEE/ACM International Conference on Automated Software Engineering (ASE 2017)*, Urbana-Champaign, USA, Oct. 30-Nov. 3, 2017, p. 943-948 (2017).

COMPOSITION DE POLYNÔMES POUR L'APPRENTISSAGE STATISTIQUE DE FONCTIONNELLES COMPLEXES

La simulation numérique joue un rôle primordial pour la compréhension des phénomènes physiques complexes. Des codes numériques sophistiqués sont développés, dont les temps d'exécution peuvent s'avérer extrêmement longs malgré des puissances de calcul toujours plus importantes. Leur utilisation pour la conception et la garantie de nouveaux systèmes physiques nécessite ainsi d'associer à chaque sortie du code un métamodèle, c'est-à-dire une approximation mathématique rapide à évaluer, permettant d'en prédire la valeur en tout point du domaine des entrées. Ce travail propose de considérer la composition de polynômes pour la construction de tels métamodèles, cela pouvant s'avérer très efficace pour l'apprentissage statistique de fonctionnelles fortement non linéaires à partir d'information réduite.

La conception et la garantie de systèmes physiques par la simulation nécessitent le développement de codes prédictifs qu'il faut généralement exécuter en un très grand nombre de points. Lorsque le coût numérique d'un appel au code est important, il est nécessaire d'approcher les sorties du code par un métamodèle. Dans cet objectif, la régression par processus gaussien est une technique d'apprentissage statistique très utilisée en raison du compromis qu'elle permet en matière de complexité, d'efficacité et de contrôle des erreurs de prédiction [1,2]. Cette technique est basée sur l'hypothèse que chaque sortie du code peut être vue comme une réalisation particulière d'un processus gaussien. Conditionner ce processus par les évaluations disponibles du code permet la construction de prédicteurs souvent très efficaces. Sans surprise, les capacités prédictives de ces prédicteurs dépendent fortement des propriétés statistiques du processus considéré. Bien choisir sa fonction moyenne et sa fonction de covariance est ainsi le point clé d'une telle technique d'apprentissage.

En particulier, on constate que la projection de la fonction moyenne sur un ensemble réduit de polynômes bien choisis peut fortement améliorer les capacités prédictives du métamodèle final [3]. Notre travail a consisté à proposer une approche alternative qui revient à écrire cette fonction sous la forme d'une composition de deux polynômes. Ainsi, au lieu de rechercher une base de projection polynomiale de taille réduite, dont les coefficients seraient correctement identifiés, l'idée est maintenant de projeter la fonction moyenne sur un très grand nombre de polynômes. En effet, en composant deux polynômes, on obtient un nouveau polynôme, dont le degré peut être beaucoup plus élevé, mais dont le nombre de grandeurs indépendantes le caractérisant reste limité.

La principale difficulté d'une telle représentation concerne l'identification des paramètres associés aux deux polynômes composés. En effet, l'évolution du polynôme composé peut être très sensible à ces paramètres. Par ailleurs, des valeurs distinctes de ces paramètres peuvent conduire à la même représentation poly-

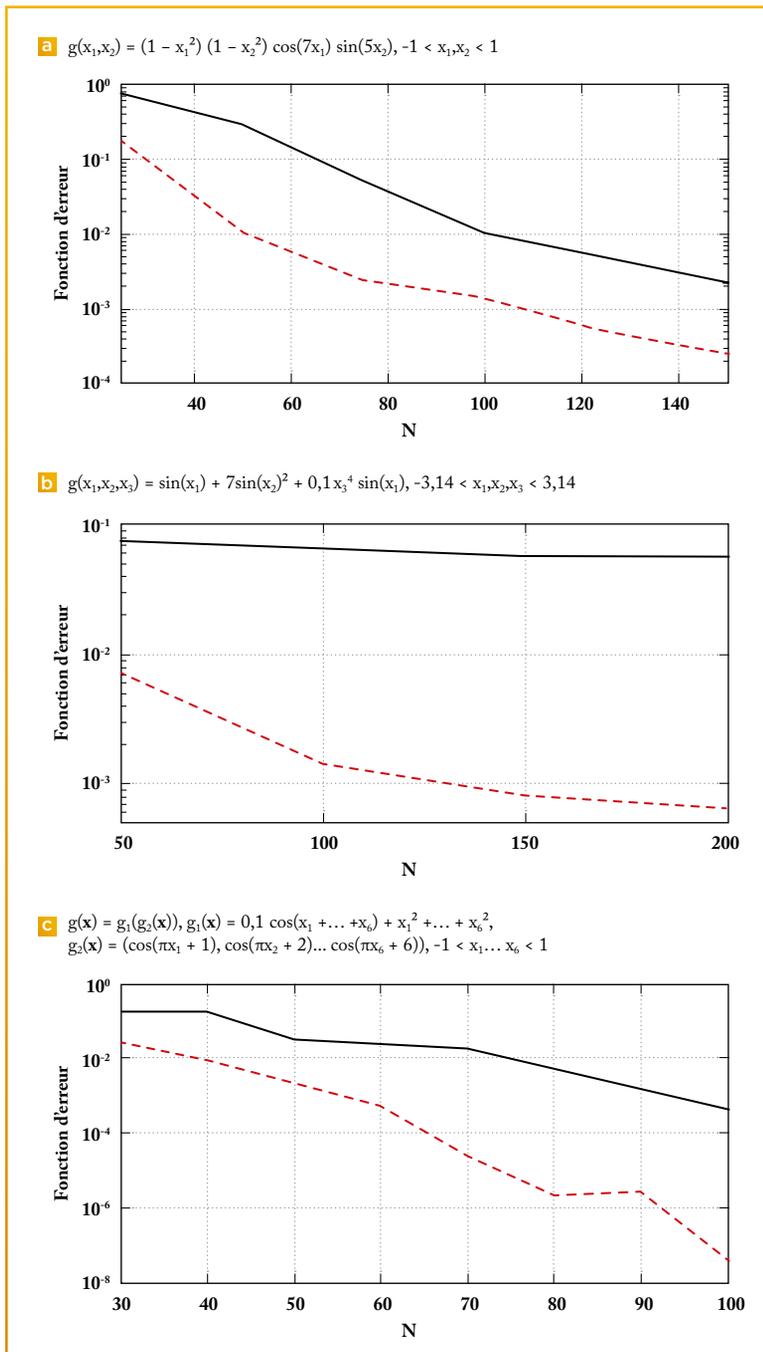


Figure 1

➤ Pour trois fonctions tests, notées $g(\mathbf{x})$, comparaison des capacités prédictives de deux métamodèles en fonction du nombre d'appels au code utilisé pour l'apprentissage et noté N . La fonction d'erreur représentée est la moyenne de l'intégrale du carré de la différence entre les valeurs de g et les valeurs prédites par chaque métamodèle. Noir continu : la fonction moyenne est directement projetée sur des polynômes bien choisis. Rouge pointillé : la fonction moyenne est approchée par une composition de deux polynômes. L'approche par composition de deux polynômes conduit à une réduction des erreurs de prédiction jusqu'à plusieurs ordres de grandeur.

nomiale finale, ce qui ne facilite pas leur identification. Pour surmonter ces difficultés, plusieurs algorithmes spécifiques ont été proposés, dont on peut trouver les détails dans la référence [4]. Les possibilités d'une telle approche ont ensuite été étudiées sur une série de fonctions classiques, dont une partie des résultats peut être visualisée sur la figure 1. Sur cette figure, on constate que la forme proposée pour la fonction moyenne permet une très nette amélioration des capacités prédictives des métamodèles. En effet, en se basant sur la même information pour l'apprentissage, on observe une réduction

des erreurs de prédiction pouvant aller jusqu'à plusieurs ordres de grandeur.

Finalement, l'objectif de ce travail est de proposer une nouvelle forme de métamodèle, basée sur la composition de polynômes. Une telle structure permet en effet d'engendrer un espace polynomial de très grande dimension, à partir d'un nombre réduit de paramètres. Cela peut conduire à des métamodèles aux propriétés prédictives renforcées par rapport à ceux classiquement utilisés dans la littérature, en particulier lorsque le nombre d'appels au code doit être limité.

RÉFÉRENCES

- 1 T. J. SANTNER, B. J. WILLIAMS, W. I. NOTZ, *The Design and Analysis of Computer Experiments*, New York, Springer (2003).
- 2 C. CANNAMELA, L. LE GRATIET, J. GARNIER, "Construction d'un métamodèle pour des codes à plusieurs niveaux de fidélité", *Revue chocs*, **48**, p. 5-14 (2017).
- 3 P. KERSAUDY, B. SUDRET, N. VARSIER, O. PICON, "A new surrogate modeling technique combining kriging and polynomial chaos expansions – Application to uncertainty analysis in computational dosimetry", *J. Comput. Phys.*, **286**, p. 103-117 (2015).
- 4 G. PERRIN, C. SOIZE, S. MARQUE-PUCHEU, J. GARNIER, "Nested polynomial trends for the improvement of Gaussian process-based predictors", *J. Comput. Phys.*, **346**, p. 389-402 (2017).

INTERACTION FLUIDE-STRUCTURE SUR GRILLE CARTÉSIENNE

La résolution des phénomènes d'interaction fluide-structure est cruciale pour de nombreuses applications. Deux matériaux — ici un fluide compressible et un corps rigide — de lois de comportement très différentes, interagissent entre eux : l'écoulement du fluide est conditionné par la forme et le déplacement de la structure, tandis que le mouvement du solide est régi par les forces et moments de pression exercés à sa surface par le fluide. C'est un problème fortement couplé dont la résolution numérique à haut degré de précision demeure un défi, la précision allant souvent à l'encontre de la stabilité. Tirant parti du savoir-faire développé au CEA – DAM sur les schémas d'ordre arbitrairement élevé sur grille cartésienne, une méthode stable, robuste et précise permettant ce couplage est proposée en même temps que sont développés des outils numériques pour l'analyse de la stabilité des conditions aux bords **1**.

Les problèmes d'interaction fluide-structure interviennent dans de nombreux domaines abordés au CEA – DAM. Une des applications qui a motivé cette étude concerne la simulation des effets à courte et longue distance d'ondes de souffle, couvrant à la fois les champs proches (réponse de structures aux ondes de choc) et les champs lointains (infrasons et signature aéroacoustique). Notre laboratoire a développé un réel savoir-faire sur les schémas d'ordre très élevé sur grille cartésienne **2**, permettant à moindre coût de calcul de suivre l'évolution des ondes aéroacoustiques sur de longues distances. Il restait néanmoins à trouver une façon de les appliquer au voisinage d'obstacles à géométrie complexe (l'interface ne coïncide pas avec le maillage). Il s'agit d'un problème de couplage avec conditions aux bords réputé difficile sur le plan de l'analyse numérique, surtout lorsqu'il s'agit de concilier stabilité et précision, la montée en ordre s'accompagnant irrémédiablement d'oscillations parasites dont il faut absolument pouvoir contrôler l'amplitude. Si de nombreuses méthodes ont été proposées (voir **3** pour un état de l'art sur cette thématique), elles n'excédaient généralement pas l'ordre deux, jusqu'aux travaux de Tan *et al.* **4** : à partir d'une procédure dite de Lax-Wendroff inverse, les conditions aux bords sont satisfaites à l'ordre arbitrairement élevé mais l'algèbre impliquée est extrêmement lourde et devient vite prépondérante en matière de coût de calcul.

En revisitant leurs travaux et en adaptant cette procédure à nos souches de schéma numérique (en particulier au formalisme Lagrange-projection : pour chaque pas en temps, les équations sont d'abord discrétisées sur un maillage suivant la matière avant d'être projetées sur la grille eulérienne), l'algèbre se trouve grandement simplifiée et les coûts de calcul deviennent raisonnables. La question de la stabilité des opérateurs discrets qui sont construits aux bords étant cruciale et fort complexe à étudier analytiquement, des outils numériques d'analyse de stabilité sont développés et validés, en partant de cas d'école (advection linéaire puis systèmes linéaires 1D) pour aller vers les problèmes d'intérêt (systèmes non linéaires 2D du type équations d'Euler).

Dans ce travail, la partie fluide est résolue par les schémas hydrodynamiques GoHy d'ordre très élevé **2**. Afin d'appliquer ces schémas aux bords, il faut imposer différents champs dans les mailles dites fantômes (recouvrant une partie de la structure) afin de respecter la condition limite physique (vitesse normale nulle dans le cas des équations d'Euler). On définit donc des opérateurs de reconstruction *via* des développements de Taylor en espace sur l'interface fluide-structure qui est discrétisée par un collier de perles. Sur chaque perle, les coefficients de ces développements sont déterminés en utilisant les données dans la partie fluide ainsi que la condition au bord et un certain

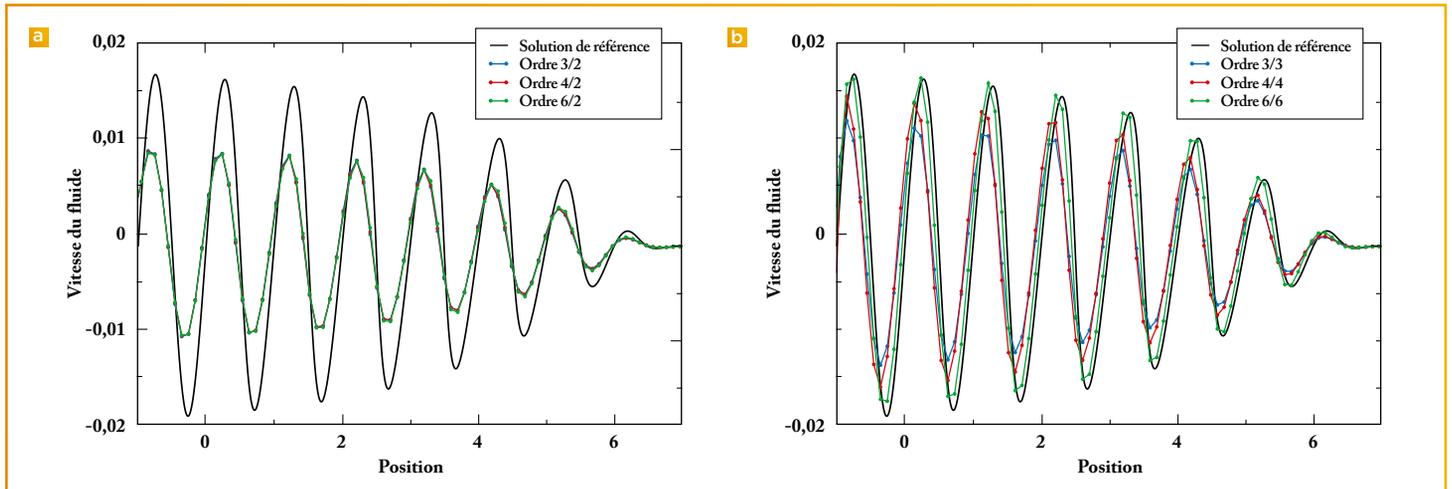


Figure 1

➔ Profils en vitesse de l'air à un instant donné. Un piston situé à la gauche du domaine et dont le mouvement s'amplifie au cours du temps oscille horizontalement et lance un train d'ondes se propageant dans l'air ambiant. La solution exacte de ce problème est représentée en noir. Les schémas intérieurs sont d'ordres 3, 4 et 6. (a) Discrétisation de la condition au bord à l'ordre 2 (cas usuel). (b) Discrétisation de la condition au bord aux ordres 3, 4 et 6 avec notre méthode. Le traitement proposé offre une bien meilleure restitution des profils, mettant en évidence l'intérêt de cette approche pour des problèmes d'aéroacoustique ou d'aéroélasticité.

nombre de ses dérivées temporelles (dérivées en espace et en temps sont liées par le jeu d'équations). Pour un ordre donné, on peut donc construire plusieurs opérateurs suivant le nombre de dérivées temporelles considéré. Tous ne sont pas stables : les outils numériques d'analyse de stabilité développés montrent sur un exemple qu'à l'ordre quatre il est nécessaire de considérer au moins deux dérivées temporelles. À la faveur de ces enseignements, la méthode est étendue aux équations d'Euler 1D (puis 2D par balayages directionnels) pour une condition limite de type vitesse normale imposée, permettant ainsi le couplage entre

un fluide compressible et un corps rigide indéformable de masse infinie. La **figure 1** montre l'apport de la montée en ordre sur la discrétisation des conditions aux bords pour ce type de problème.

Notre méthode fournissant une évaluation à l'ordre élevé de la pression et du champ de vitesse sur chaque perle de l'interface, les intégrales des forces et moments appliqués au solide sont aisément calculées sans perte d'ordre. Le couplage à l'ordre élevé en espace et en temps entre un fluide compressible et un corps rigide de masse finie – donc mobile – est alors naturel et immédiat (**figure 2**).

Une meilleure précision avec un nombre de mailles moindre étant atteinte, l'apport de l'ordre élevé pour les problèmes d'interaction fluide-structure (champ proche) a donc été prouvé, ouvrant ainsi la voie aux simulations complètes sur les effets des ondes de souffle. La méthode proposée s'étend naturellement en trois dimensions d'espace, dès lors que la surface de la structure est discrétisée par un nuage de perles.

RÉFÉRENCES

- 1 G. DAKIN, B. DESPRÉS, S. JAOUEN, "Inverse Lax-Wendroff boundary treatment for compressible Lagrange-remap hydrodynamics on Cartesian grids", *J. Comput. Phys.*, **353**, p. 228-257 (2018).
- 2 O. HEUZÉ, S. JAOUEN, H. JOURDREN, "Dissipative issue of high-order shock-capturing schemes with non-convex equations of state", *J. Comput. Phys.*, **228**, p. 833-860 (2009).
- 3 G. DAKIN, "Couplage fluide-structure d'ordre (très) élevé pour des schémas volumes finis 2D Lagrange-projection", Thèse de doctorat de l'université Pierre-et-Marie-Curie, soutenue le 9 novembre 2017.
- 4 S. TAN, C. W. SHU, "Inverse Lax-Wendroff procedure for numerical boundary conditions of conservation laws", *J. Comput. Phys.*, **229**, p. 8144-8166 (2010).

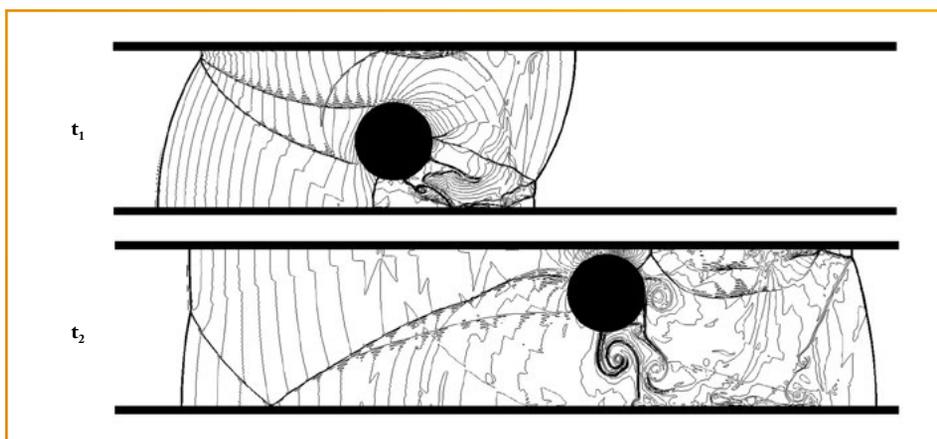


Figure 2

➔ Interaction fluide-corps rigide mobile (problème adimensionné). Un choc à Mach 3 venant de la gauche vient impacter un cylindre indéformable de masse finie initialement au repos sur le bord bas d'un canal. Les forces de pression qui s'exercent sur le cylindre (disque noir) vont le soulever et le déplacer au sein du canal. Les isovalues de densité du gaz, représentées à deux instants différents ($t_2 > t_1$), permettent d'appréhender la complexité du système d'ondes qui se met en place (chocs transmis et réfléchis, multiples réflexions sur les bords du canal, vortex se développant sous le cylindre, etc.).

CHOCS AVANCÉES

N° 12 - juin 2018

DE LA RECHERCHE À L'INDUSTRIE



CEA - DAM
Institut supérieur des études nucléaires
de défense (ISENDé)

Courriel : chocs@cea.fr

