

CHOCS

# avancées 2009

Avancées scientifiques et techniques de la Direction des applications militaires



energie atomique • énergies alternatives

# sommaire

## 1 ÉDITORIAL

À propos des 50 ans de l'invention du laser  
T. MASSARD

## INTERACTION LASER-MATIÈRE

- 3 Expériences d'instabilités Rayleigh-Taylor en attaque indirecte avec des cavités rugby  
A. CASNER, D. GALMICHE, G. HUSER, J.-P. JADAUD, A. RICHARD, S. LIBERATORE, M. VANDENBOOMGAERDE
- 6 Contrôle « tout optique » des faisceaux d'électrons accélérés par sillage laser  
E. LEFEBVRE, X. DAVOINE, A. BECK, C. RECHATIN, J. FAURE, V. MALKA
- 8 Dynamique et stabilité des structures à double front d'ablation  
M. OLAZABAL-LOUMÉ, V. DREAN, J. SANZ, V.-T. TIKHONCHUK
- 10 Couplage de l'effet Landau avec l'amplification Raman  
R. BELAOUAR, T. COLIN, G. GALLICE

## PHYSIQUE ATOMIQUE

- 12 Étude de l'opacité d'un mélange de fer et de magnésium chauffé radiativement  
C. BLANCARD, PH. COSSÉ, G. FAUSSURIER, J.E. BAILEY, G.A. ROCHAU, R.C. MANCINI, C.A. IGLESIAS, J.J. MACFARLANE, I.E. GOLOVKIN
- 14 Opacité radiative des plasmas chauds : des approches statistiques aux calculs détaillés  
J.-C. PAIN, F. GILLERON, Q. PORCHEROT

## PHYSIQUE NUCLÉAIRE

- 16  $N = 28$  : une fermeture de couche en pleine forme  
L. GAUDEFROY

## PHYSIQUE DE LA MATIÈRE CONDENSÉE

- 18 Spectres *ab initio* d'absorption X d'un plasma dense d'aluminium  
V. RECOULES, S. MAZEVET
- 20 Modélisation *ab initio* du diagramme de phase solide à basse pression et haute température du béryllium  
G. ROBERT, P. LEGRAND, S. BERNARD

## SCIENCE DES MATÉRIAUX

- 22 Précipitation durcissante dans un alliage d'aluminium soudé par faisceau d'électron  
S. RINGEVAL, G. TEXIER, V. VIGNAL, A. DESCHAMPS

## 24 Étude *ab initio* des premières étapes de l'oxydation du silicium

A. HEMERYCK, A. ESTÈVE, N. RICHARD, M. DJAFARI ROUHANI, Y. J. CHABAL

## 26 Couches magnétiques à haute perméabilité : une modélisation prédictive

F. DUVERGER, V. DUBUGET, O. ACHER, S. DUBOURG, A.-L. ADENOT, P. THIBAUDEAU, A. THIAVILLE

## CHIMIE

## 28 Synthèse de nouveaux matériaux supramoléculaires par auto-assemblage

A. BALLAND-LONGEAU, L. MOREAU, J. THIBONNET

## 30 MATEO : logiciel intégré pour déterminer les propriétés de matériaux énergétiques par une approche multi-échelles

D. MATHIEU

## 32 Caractérisation par RMN de composés tricycliques polyazotés

P. PALMAS, C. NYFFENEGGER, E. PASQUINET, G. GUILLAUMET

## ENVIRONNEMENT

## 34 Le radon-222 et les ondes de marée : un outil d'aide à la compréhension de la dynamique des systèmes géologiques

P. RICHON, E. PILI

## 36 Le tritium dans la matière organique des végétaux

L. VICHOT, Y. LOSSET

## CALCUL NUMÉRIQUE

## 38 Calcul haute performance en transfert radiatif

V. ARSLAN, P. CARRIBAULT, C. ENAUX, H. JOURDREN, M. PÉRACHE

## 40 Méthodes numériques pour l'hydrodynamique Lagrangienne appliquées à la simulation de la Fusion par Confinement Inertiel

P.-H. MAIRE, J. BREIL, S. GALERA, G. SCHURTZ

## 42 Visualisation multirésolution de résultats de simulations

F. VIVODTZEV

## 44 OPTO-ÉLECTRONIQUE

Vers une nouvelle génération d'oscilloscopes *temps réel*

A. JOLLY, J.-F. GLEYZE

## 47 PRIX ET DISTINCTIONS, SOUTENANCES HDR



Commissariat à l'énergie atomique et aux énergies alternatives

Chocs Avancées 2009, Avancées scientifiques et techniques de la Direction des applications militaires.

Image de couverture : vue artistique représentant des plaques de verre laser dopé au néodyme équipant la Ligne d'intégration laser (LIL) et le futur Laser Mégajoule (LMJ) au centre du CEA / CESTA en Gironde. © D. Sarraute/CEA

Directeur de la publication : Thierry MASSARD. Coordinateur scientifique : Antoine BOURGEADE. Comité scientifique : Philippe BELLEVILLE, Daniel BOUCHE, Gilles DAMAMME, Philippe DUVIGNAC, Francis HARDOUIN, Jean-Pierre LEYRAT, Christophe LELOUP, Christophe MOULIN, Rémi SENTIS, Philippe SIMONETTI, Christophe THIÉBAUT, Catherine TREIMANY. Rédacteur en chef : Michel BOIVINEAU.

Création et réalisation : EFIL / www.efil.fr. Impression : Gibert & Clarey, Chambray-lès-Tours. Secrétariat, diffusion et abonnement : Régis VIZET.

Chocs Avancées

CEA - DAM

Institut supérieur des études nucléaires de défense (ISENDé)

Bruyères-le-Châtel, F-91297 Arpajon cedex

Tél : 33 (0)1 69 26 76 98 - Fax : 33 (0)1 69 26 70 80

E-mail : chocs@cea.fr

Brochure imprimée sur papier écogéré  
ISSN 1961-7399

# éditorial



**Par Thierry Massard**  
Directeur scientifique de la Direction  
des applications militaires

## À propos des 50 ans de l'invention du laser

Cette année nous fêtons le cinquantième anniversaire de la naissance du Laser. Peu de technologies ont eu autant de retombées pour le CEA et tout particulièrement pour la DAM. L'histoire de la DAM suit, à quelques années près, l'histoire des grands lasers de puissance. En effet, à peine connue la réalisation du premier laser en 1960 par Theodore Maiman, le général de Gaulle lançait un programme ambitieux de développement des lasers de puissance en France. La CGE et le CEA ont été étroitement associés dans cette aventure. Que de records et de premières ont été réalisées par nos équipes depuis le laser « L1 », premier laser au Néodyme, jusqu'au LMJ en construction près du CEA-CESTA, en passant par P102, Octal et Phébus au CEA-Limeil. Les premiers neutrons de fusion ont été observés sur le laser L5 en 1969 en irradiant un bâtonnet de deutérium solide. Quelques années plus tard, en 1981, la première imagerie neutronique fut obtenue sur une cible cryogénique. Ces expériences marquent au CEA les premiers pas de la recherche sur la fusion par confinement inertiel. De nombreuses collaborations internationales sont nées de ces travaux notamment avec l'Université de Rochester sur le laser Omega. Nous venons de célébrer les 10 ans de la première expérience du CEA sur cette installation.

Aujourd'hui, grâce aux progrès réalisés lors des dernières décennies dans la technologie laser, mais aussi dans l'optimisation de cibles cryogéniques, les scientifiques sont probablement en passe d'atteindre l'ignition d'un mélange de deutérium et de tritium sur les lasers de nouvelle génération que sont le LMJ et le NIF. À n'en pas douter, cet évènement marquera une étape décisive de l'histoire des lasers et ouvrira de nouvelles perspectives pour les applications futures de la fusion et l'étude des réactions thermonucléaires dans les plasmas denses.

Avec de grands laboratoires œuvrant depuis de nombreuses années dans ce domaine, tels que le LULI et le CELIA en France, le CLF en Grande-Bretagne, le PALS en République tchèque et GSI en Allemagne, la recherche européenne est, à coup sûr, bien armée pour être un acteur clé dans ce secteur émergent. Le CEA peut y tenir une place de leader stratégique au meilleur niveau mondial.



Vue de la chambre expérimentale du LMJ.

Les lasers à la DAM sont au cœur du programme Simulation destiné à garantir la fiabilité et la sûreté des armes nucléaires de la dissuasion française. Le Laser LMJ permettra de reproduire des conditions de température et de pression analogues à celles rencontrées dans le fonctionnement d'une arme nucléaire. La DAM dispose

ainsi d'un laboratoire pour la formation des futurs concepteurs, pour la mesure des grandeurs physiques essentielles à la Simulation et la validation des codes de conception des armes.

À côté de son objectif pour la Défense, le LMJ a vocation à s'ouvrir. C'est un grand instrument unique pour la recherche scientifique dans des domaines aussi variés que l'énergie par la fusion, l'astrophysique, la physique des intérieurs stellaires. Depuis 2005 des expériences ouvertes sont proposées à la communauté scientifique sur la LIL. Des résultats importants ont été obtenus et publiés – certains dans «Avancées». La mise en service du LMJ, puis du laser PETAL financé par l'État et par la Région Aquitaine, marquera une accélération très forte du programme d'ouverture. Disposant en un seul lieu de la plus grande plateforme laser au monde, le CEA poursuivra une ambitieuse politique de collaboration scientifique avec les organismes de recherche nationaux (CNRS, École Polytechnique, ENSTA, Universités, ...) et développera des partenariats internationaux dans le cadre de grands projets européens des lasers tels que HiPER, ELI, ou encore HILASE.

Dans ce numéro d'Avancées 2009, nous avons donc choisi de présenter en premier lieu et, symboliquement, quelques publications de la DAM dans le domaine des lasers, ou connexes à cette thématique. Mais la science à la DAM étant, par essence, multidisciplinaire, le lecteur trouvera également des avancées dans de nombreux autres domaines que ce soit dans celui de la physique atomique dans les plasmas, la physique de la matière condensée, la physique nucléaire, l'opto-électronique, la chimie, l'environnement ou dans celui des matériaux. Nombre de ces articles montrent combien la simulation numérique est devenue un outil de recherche au même titre que les grands instruments. Une révolution du calcul haute performance qui se fait grâce aux grands calculateurs. Là encore, la DAM avance en première ligne, mais cela est une autre histoire...

## glossaire

### **CELIA**

Centre lasers intenses et applications

### **CGE**

Compagnie générale d'électricité

### **CLF**

Central Laser Facility

### **ELI**

Extreme Light Infrastructure

### **GSI**

Gesellschaft für Schwerionenforschung mbH

### **HILASE**

High repetition LASER

### **HiPER**

High Power laser Energy Research facility

### **LIL**

Ligne d'intégration laser

### **LULI**

Laboratoire pour l'utilisation des lasers intenses

### **LMJ**

Laser Mégajoule

### **NIF**

National Ignition Facility

### **PALS**

Prague Asterix Laser System

### **PETAL**

Petawatt Aquitaine Laser

# Expériences d'instabilités Rayleigh-Taylor en attaque indirecte avec des cavités rugby

La maîtrise du développement des instabilités hydrodynamiques de type Rayleigh-Taylor est primordiale pour la réalisation d'implosions performantes sur le Laser Megajoule (LMJ). En présence d'un front d'ablation, la complexité de ces instabilités nécessite une validation expérimentale des modèles théoriques et des simulations numériques associées. Une plate-forme dédiée, utilisant des cavités de conversion en forme de ballon de rugby, nous a permis de quantifier en géométrie plane le développement de différents types de défauts sinusoïdaux (2D monomodes ou multimodes, 3D) pour un ablateur représentatif de celui du LMJ. Historiquement, ces expériences débutées en 2002 ont été les premières à promouvoir la cavité rugby, maintenant filière nominale des cibles d'ignition pour le LMJ, et alternative pour l'ignition sur le National Ignition Facility (NIF).

A. Casner • D. Galmiche • G. Huser • J.-P. Jadaud • A. Richard • S. Liberatore • M. Vandenboomgaerde  
CEA - DAM Île-de-France

Le contrôle du développement de défauts lors de l'implosion d'une capsule de combustible est primordial pour obtenir l'ignition dans le programme de Fusion par confinement inertiel (FCI) sur le LMJ ou le NIF [1]. Lors de la phase d'accélération de la coquille, l'instabilité de Rayleigh-Taylor (RT) se développe au front d'ablation, dont les caractéristiques (vitesse d'ablation, longueur minimale de gradient) modifient les taux de croissance classiques de l'instabilité. Les expériences en attaque indirecte, réalisées sur l'installation laser Omega, nous ont permis de valider la modélisation et les simulations numériques de croissance de défauts pour différentes conditions initiales dans le cas d'un ablateur plastique dopé au Germanium (CH:Ge).

## Géométrie expérimentale

La configuration expérimentale est présentée sur la **figure 1**. 40 faisceaux de chauffage distribués selon 3 cônes (à 21°, 42° et 59° de l'axe cavité) sont utilisés pour irradier une cavité de conversion en forme de ballon de rugby [2]. Les parois proches du Trou d'entrée laser (TEL) sont inclinées pour faciliter l'absorption des faisceaux du cône à 21°

(en bleu clair et gris) qui se propagent à travers toute la cavité. L'échantillon en plastique modulé est placé sur la paroi latérale de la cavité et mis en vitesse sous l'effet du flux X créé dans la cavité.

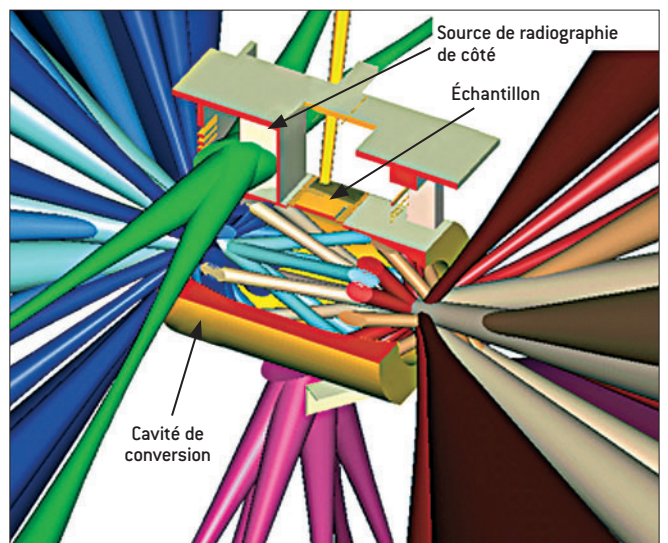
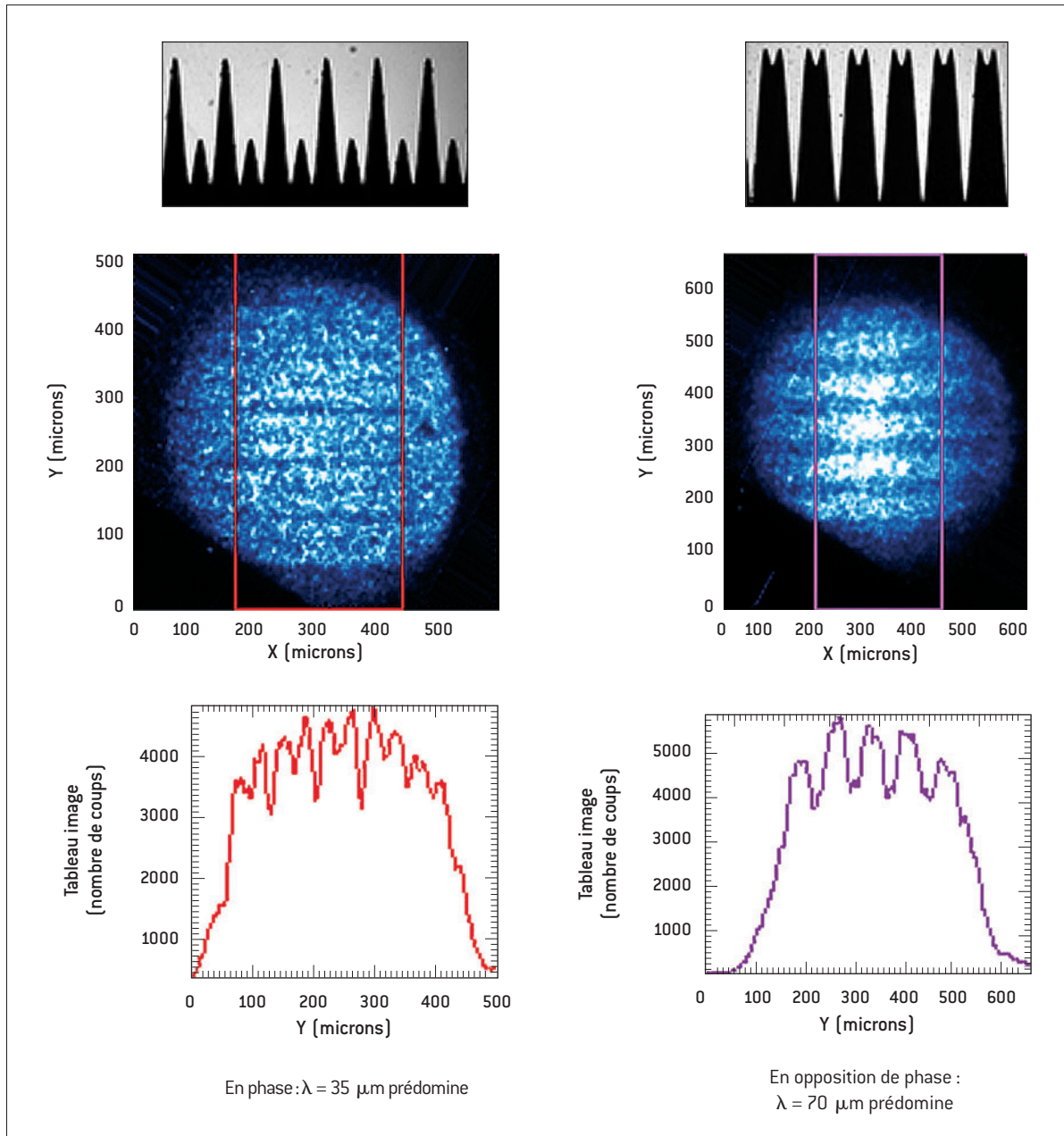


Figure 1. Schéma de la configuration expérimentale.

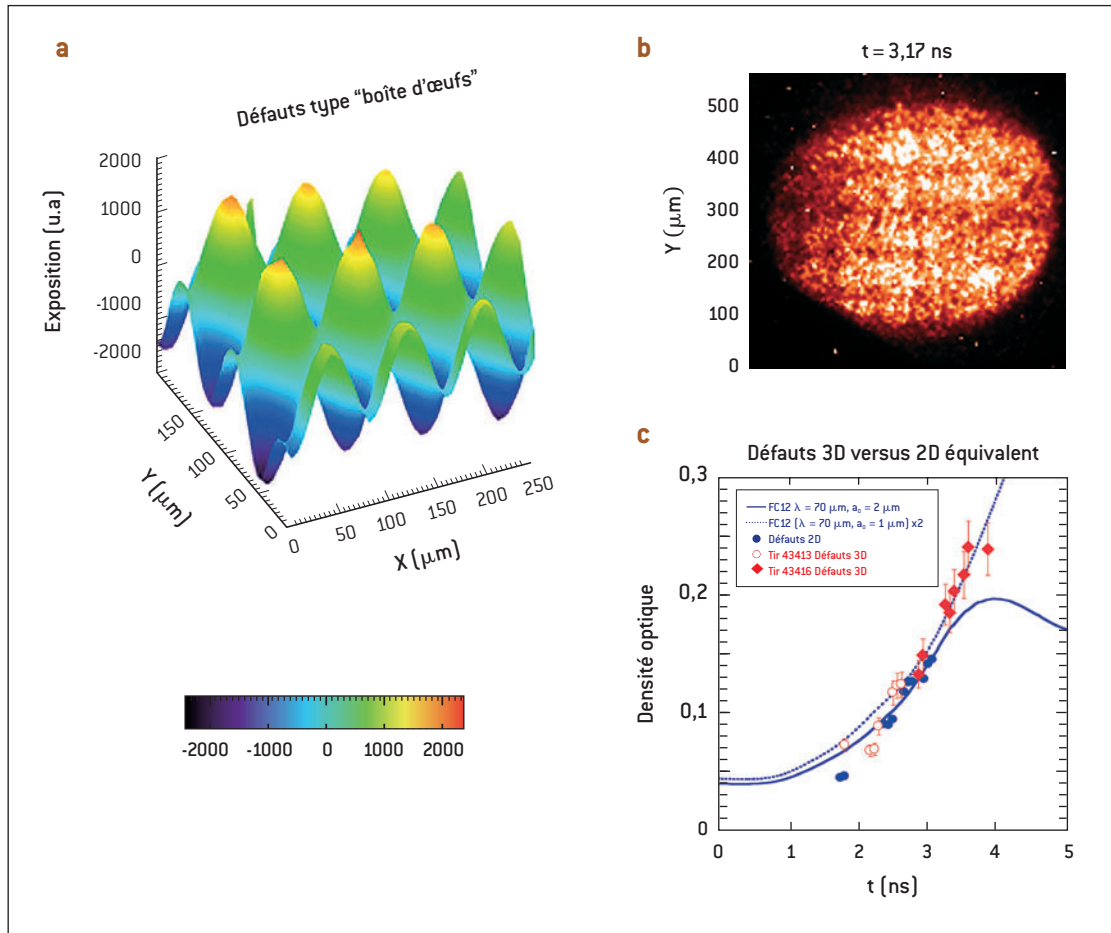
Deux radiographies simultanées sont réalisées pour caractériser l'accélération de la feuille (source de radiographie de côté en titane irradiée par 4 faisceaux, en vert sur la **figure 1**) et la croissance des défauts (source de face en scandium irradiée par 8 faisceaux, en violet). En plus des mesures de température radiative effectuées grâce à un spectromètre large bande, des mesures complémentaires de flux X et de débouché de chocs nous ont permis de préciser le flux X incident sur l'échantillon latéral [2].

### Couplage de modes

Ce flux pris en compte, les croissances de défauts mesurées sont en accord avec les simulations réalisées avec le code d'hydrodynamique radiative FCI2. Au-delà de la caractérisation de défauts monomodes, nous nous sommes intéressés au couplage de modes. La **figure 2** présente les radiographies expérimentales obtenues à un même instant dans le cas de défauts initiaux bi-modes (de longueurs d'onde  $\lambda = 35 \mu\text{m}$  et  $70 \mu\text{m}$ ), en phase ou en opposition de phase. Conformément aux



**Figure 2.** Illustration du phénomène de couplage de modes dépendant de la phase initiale entre les perturbations de longueurs d'onde  $\lambda = 35 \mu\text{m}$  et  $\lambda = 70 \mu\text{m}$ .



**Figure 3.** (a) Motif initial de défauts 3D, (b) radiographie de face à  $t = 3,17$  ns et (c) comparaison de la croissance des perturbations 3D (en densité optique) et celle du monomode 2D équivalent.

prévisions analytiques et aux simulations, suivant la phase initiale, l'une des longueurs d'onde devient prédominante au cours du temps.

### Développement de défauts 3D

La croissance de défauts 2D ou 3D est différente dans la phase non linéaire de l'instabilité RT. Nous nous sommes donc intéressés à la croissance de défauts initiaux de type boîte d'œufs (figure 3), et l'avons comparée à celle du monomode 2D équivalent. Nous constatons bien que le défaut 3D sature à une amplitude supérieure à celle du 2D, comme prévu par la théorie.

### Perspectives

Ces expériences nous ont permis de valider la modélisation de croissance de défauts pour un ablateur de type LMJ sous diverses conditions initiales. Elles ont servi de point de départ aux études actuelles visant à caractériser l'effet de la structuration de l'ablateur (concept du gradient de

dopant ou de l'ablateur feuilleté [1]) sur la croissance de l'instabilité RT. L'avantage énergétique procuré par la géométrie rugby [3] sur une cavité cylindrique classique a, quant à lui, été démontré par les implosions en attaque indirecte les plus performantes à ce jour sur l'installation Omega [4].

### RÉFÉRENCES

- [1] L. MASSE, "Stabilizing effect of anisotropic thermal diffusion on the Ablative Rayleigh-Taylor Instability", *Phys. Rev. Lett.*, **98**, 245001 [2007].
- [2] A. CASNER *et al.* "Indirect drive ablative Rayleigh-Taylor experiments with rugby hohlraums on Omega", *Phys. Plasmas*, **16**, 092701 [2009].
- [3] M. VANDENBOOMGAERDE *et al.*, "Prolate spheroid ("rugby-shaped") hohlraum for inertial confinement fusion", *Phys. Rev. Lett.*, **99**, 065004 [2007].
- [4] F. PHILIPPE *et al.* "Experimental demonstration of X-Ray Drive Enhancement with Rugby-shaped hohlraums", *Phys. Rev. Lett.*, **104**, 035004 [2010].

# Contrôle « tout optique » des faisceaux d'électrons accélérés par sillage laser

En raison des forts champs électrostatiques qu'ils peuvent supporter, les plasmas sont des milieux de choix pour réaliser des accélérateurs de particules extrêmement compacts. La méthode du « sillage laser » consiste à utiliser une impulsion laser courte et intense pour exciter une onde électrostatique dans un plasma de très basse densité. Les champs accélérateurs ainsi créés peuvent atteindre 100 GV/m – à peu près quatre ordres de grandeur de plus que dans les cavités accélératrices conventionnelles ! Pour accélérer de la sorte un faisceau électronique de bonne qualité (forte charge, faible dispersion en énergie, faible émittance, bonne stabilité...), encore faut-il être capable « d'injecter » les électrons dans le champ de sillage avec une grande précision. Les travaux expérimentaux conduits au Laboratoire d'Optique Appliquée (LOA) et les modèles numériques développés au CEA - DAM Île-de-France ont permis de réaliser des progrès significatifs dans ce domaine au cours des dernières années.

E. Lefebvre • X. Davoine • A. Beck CEA - DAM Île-de-France

C. Rechatin • J. Faure • V. Malka Laboratoire d'Optique Appliquée, ENSTA / CNRS / École Polytechnique

Lors de sa propagation dans un plasma peu dense, une impulsion laser brève (quelques dizaines de femtosecondes) et extrêmement intense (plus de  $10^{18}$  W/cm<sup>2</sup>) expulse les électrons qu'elle rencontre et crée ainsi dans son sillage une onde électrostatique de grande vitesse de phase et de forte amplitude : les champs produits peuvent atteindre une centaine de GV/m, ce qui dépasse de plusieurs ordres de grandeurs les limites technologiques des accélérateurs conventionnels. Ces « accélérateurs laser-plasma », très compacts, font l'objet d'intenses recherches et sont de mieux en mieux maîtrisés [1].

Pour produire des faisceaux d'électrons présentant une faible dispersion en énergie, il faut contrôler finement l'injection des particules dans l'onde de sillage. Une méthode originale, reposant sur l'utilisation d'un second faisceau laser dirigé tête-bêche avec l'impulsion créant le sillage, peut assurer cette fonction d'injection (figure 1). Dans cette technique dite de « collision d'impulsion », la seconde impulsion laser crée, lors de son croisement avec la première, une onde de battement qui perturbe le mouvement des électrons du plasma (figure 1b). Certains d'entre eux gagnent alors une impulsion longitudinale suffisante pour permettre leur piégeage

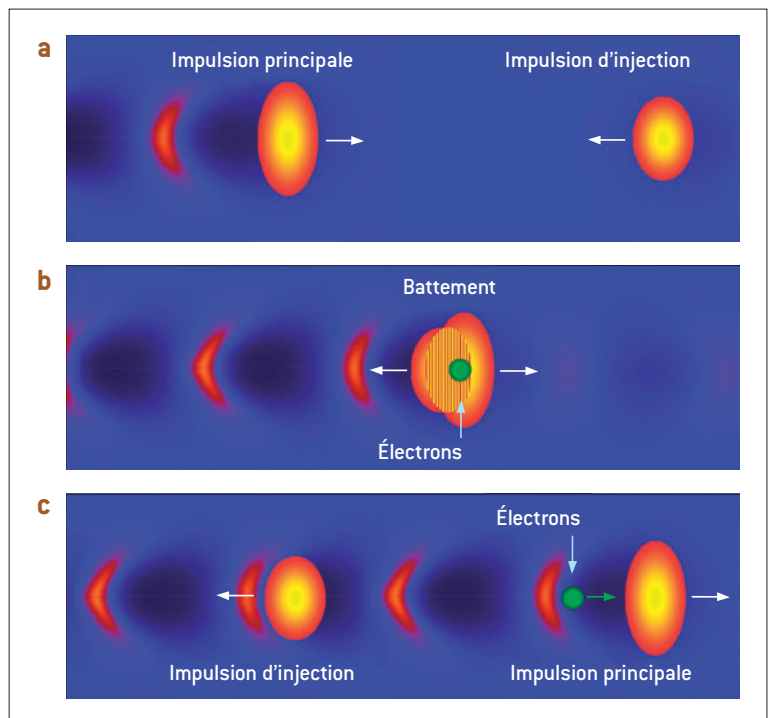


Figure 1. Les trois phases de l'accélération laser-plasma avec collision. La carte de couleur correspond à la densité électronique et les ellipses jaunes aux impulsions laser contra-propagatives, représentées avant (a), pendant (b) et après (c) leur collision.



dans l'onde de sillage et leur accélération à haute énergie (figure 1c). La première démonstration expérimentale de cette méthode a été réalisée au LOA il y a quelques années [2], permettant d'obtenir des faisceaux d'électrons stables et présentant une faible dispersion en énergie. En jouant sur le lieu de croisement des deux impulsions dans le plasma, on fait varier la distance d'accélération des particules après leur injection, ce qui fournit un bouton de réglage simple de l'énergie finale du faisceau. La possibilité de varier la charge du faisceau via la polarisation des deux ondes laser a aussi été démontrée.

La simulation numérique de cette interaction à haute intensité laser requiert des outils tenant compte à la fois de ses aspects cinétiques, relativistes, et multi-dimensionnels. Le code CALDER, développé au CEA, est donc bien adapté pour décrire cette physique, et a été utilisé pour simuler, à échelle 1 – c'est-à-dire en géométrie 3D et avec les distances, densités et temps caractéristiques de l'expérience – la situation rencontrée au LOA. Ces calculs ne sont rendus possibles que par le recours à des calculateurs massivement parallèles, tels Téra 10 ou les machines du CCRT. L'analyse de ces simulations montre une bonne concordance entre expériences et calculs, illustrée sur la figure 2 sur l'énergie des électrons accélérés [3].

Le faisceau d'électrons accéléré dans l'onde de sillage modifie subtilement l'amplitude de l'onde, selon le phénomène dit de « beamloading ». En dissociant l'excitation de l'onde de sillage (par la première impulsion laser) et l'injection dans celle-ci d'une quantité variable d'électrons (à l'aide de l'impulsion contra-propagative), le schéma de collision d'impulsions a permis la première observation expérimentale du « beamloading » dans un accélérateur laser-plasma. Ces mesures se sont à nouveau révélées en bon accord avec les simulations CALDER [4].

Les modèles théoriques indiquent que, pour accélérer des paquets d'électrons de plus forte charge tout en préservant une bonne résolution en énergie, il est nécessaire de contrôler le profil temporel du paquet d'électrons. En jouant sur l'intensité, la durée et le profil spatial du faisceau contra-propagatif, nous avons démontré, par le calcul, que les trajectoires des électrons pouvaient

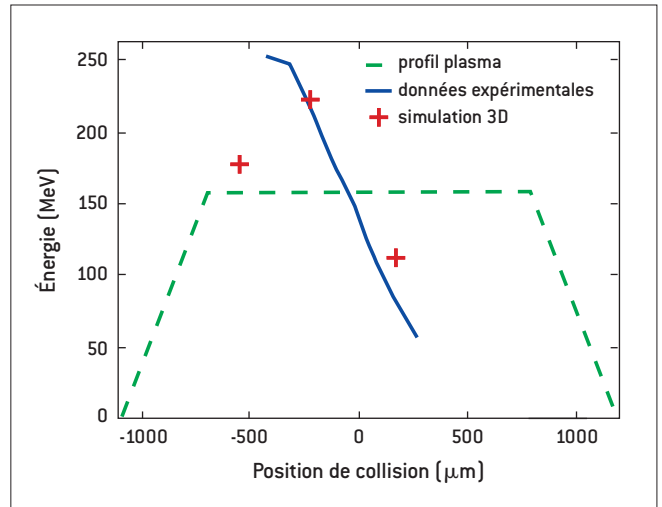


Figure 2. Variation de l'énergie finale des électrons avec le lieu de collision des impulsions. Résultats expérimentaux et simulations 3D.

être contrôlées [5] de façon à produire, à volonté, des profils de courant plats ou piqués vers l'avant ou vers l'arrière de l'onde de sillage. Ce contrôle « tout optique » des faisceaux accélérés, que nous espérons maintenant confirmer expérimentalement, pourrait bouleverser le champ d'applications des accélérateurs laser-plasma.

## RÉFÉRENCES

- [1] V. MALKA, J. FAURE, Y. GAUDUEL, E. LEFEBVRE, A. ROUSSE, K. TA PHUOC, "Principles and applications of compact laser-plasma accelerators", *Nature Physics*, **4**, p. 447-453 [2008].
- [2] J. FAURE, C. RECHATIN, A. NORLIN, A. LIFSCHITZ, Y. GLINEC, V. MALKA, "Controlled injection and acceleration of electrons in plasma wakefields by colliding laser pulses", *Nature*, **444**, p. 737-739 [2006].
- [3] X. DAVOINE, E. LEFEBVRE, J. FAURE, C. RECHATIN, A. LIFSCHITZ, V. MALKA, "Simulation of quasimonoenergetic electron beams produced by colliding pulse wakefield acceleration", *Phys. Plas.*, **15**, 113102 [2008].
- [4] C. RECHATIN, X. DAVOINE, A. LIFSCHITZ, A. BEN ISMAIL, J. LIM, E. LEFEBVRE, J. FAURE, V. MALKA, "Observation of beam loading in a laser-plasma accelerator", *Phys. Rev. Lett.*, **103**, 194804 [2009].
- [5] X. DAVOINE, E. LEFEBVRE, C. RECHATIN, J. FAURE, V. MALKA, "Cold optical injection producing mono-energetic, multi-GeV electron bunches", *Phys. Rev. Lett.*, **102**, 065001 [2009].

# Dynamique et stabilité des structures à double front d'ablation

Dans les ablateurs de  $Z$  modéré, les effets radiatifs sont en concurrence avec la conduction électronique. La zone d'ablation présente alors une structure à deux fronts. Un nouveau modèle théorique prenant en compte deux mécanismes de transport de l'énergie est développé et permet de définir les paramètres importants de cette structure. Ces paramètres sont évalués pour différents matériaux d'après une description physique réaliste. Une analyse de stabilité en régime linéaire est ensuite réalisée au moyen de simulations numériques.

M. Olazabal-Loumé CEA - CESTA • Centre Lasers Intenses et Applications (CELIA)

V. Drean • V.-T. Tikhonchuk CELIA, UMR 5107 Université Bordeaux 1 - CNRS - CEA

J. Sanz ETSI Aeronauticos, Université Polytechnique de Madrid, Espagne

Dans les cibles de fusion par confinement inertiel (FCI) en attaque directe, l'énergie laser est absorbée au voisinage de la densité critique et transportée principalement par conduction thermique électronique dans la partie dense de la cible, jusqu'au front d'ablation. En ce lieu, au cours de l'implosion, pendant la phase d'accélération, de petites déformations peuvent être amplifiées par des mécanismes d'instabilités hydrodynamiques et compromettre le bon fonctionnement de la cible. Selon des expériences récentes [1], l'emploi d'ablateurs dopés, de  $Z$  modéré et présentant une structure à «double front d'ablation» (DFA), pourrait améliorer la stabilité de la cible.

## Dynamique 1D des structures DFA

Un ensemble de simulations numériques 1D réalisées avec le code de FCI du CELIA, CHIC [2], pour différents matériaux ( $CHBr$ ,  $SiO_2$  et  $Al$ ) et différentes intensités laser ont permis d'étudier la formation et l'évolution de la structure DFA. Des effets radiatifs ont été mis en évidence dans les profils hydrodynamiques : les photons énergétiques émis dans la région de la couronne (hautes températures, faibles densités) sont absorbés dans les régions plus opaques au pied de l'onde thermique, et créent un front d'ablation additionnel. La figure 1 présente les profils de température et de densité typiques d'un DFA. La région séparant les deux fronts, le plateau, est caractérisée par l'égalité des températures radiative et électronique. Elle est bien définie durant la phase d'accélération. Différents profils de densité sont présentés en figure 2a. Un nouveau modèle théorique quasi-isobare [3,4] a été

développé et permet de comprendre les principaux mécanismes qui régissent l'écoulement 1D des structures. Contrairement à des modèles d'ablation plus anciens, deux mécanismes de transport de l'énergie sont pris en compte : la conduction électronique décrite par le modèle de Spitzer-Härm et la conduction radiative décrite par l'approximation de la diffusion. Dans ce dernier cas, un modèle gris est considéré pour les opacités moyennes de Planck et de Rosseland. Les opacités sont alors décrites par des expressions analytiques dans deux domaines de température séparés par une température de transition liée à un changement de niveau d'ionisation dans la zone d'ablation. Ces expressions analytiques ont été obtenues à partir de simulations numériques CHIC pour différents matériaux [3,4]. La résolution des équations dans la région d'ablation permet alors de caractériser les profils d'écoulement à

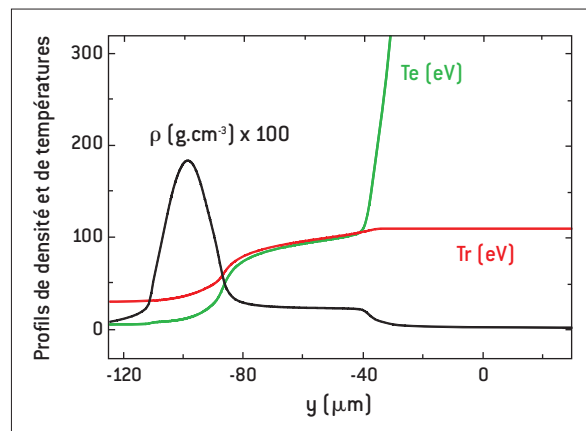


Figure 1. Profils de densité et de températures électronique et radiative typiques d'une structure DFA pour une cible d'aluminium pendant la phase d'accélération.

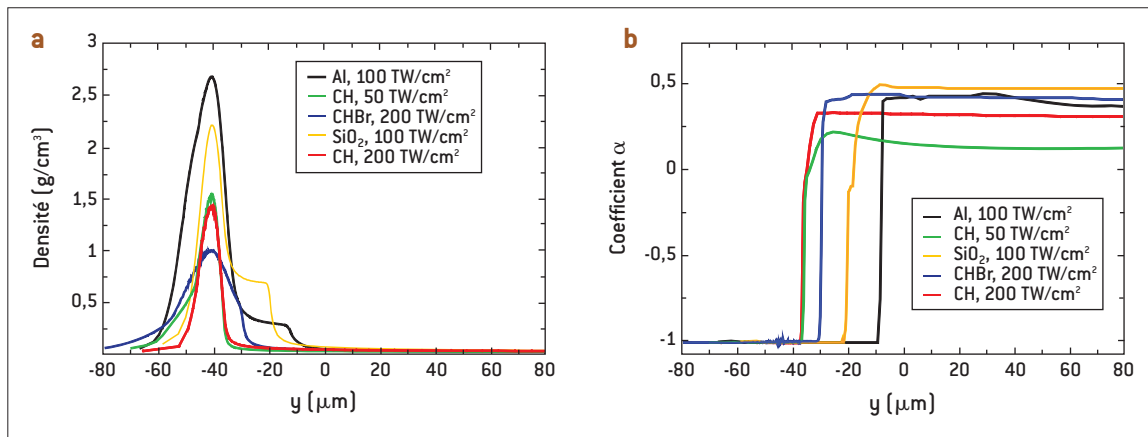


Figure 2. (a) Profils de densité pour différents matériaux. (b) Paramètre  $\alpha$  du modèle théorique.

l'aide principalement de deux paramètres. Le premier,  $\beta_t$ , permet d'estimer si les deux fronts d'ablation de la structure DFA sont bien définis et distincts. Ce paramètre est d'autant plus grand que les effets radiatifs sont importants. Typiquement, nous trouvons,  $\beta_t = 1 ; 6,4$  et  $19,4$  respectivement pour du CH, CHBr et SiO<sub>2</sub>. Le deuxième paramètre  $\alpha$  est le rapport entre le flux radiatif et le flux total (figure 2b). Il met en évidence le rôle dominant du flux radiatif dans l'existence du double front et l'égalisation des flux électronique et radiatif derrière le deuxième front, ce qui constitue une interprétation nouvelle de la structure par rapport aux études précédentes [1].

### Stabilité linéaire des structures DFA

La figure 3 présente les taux de croissance de l'instabilité de Rayleigh-Taylor ablative (IRTA) au premier front en fonction du nombre d'onde  $k = 2\pi/\lambda$ ,  $\lambda$  étant la longueur d'onde de la perturbation. Ces résultats ont été obtenus avec les codes CHIC 2D et PERLE dans le cas de l'irradiation d'une plaque de plastique dopée au brome par un laser de 100 TW/cm<sup>2</sup>. Le code PERLE est dédié à l'étude de l'évolution temporelle et spatiale de perturbations linéaires d'un écoulement instationnaire [5]. Incluant la même description du transport radiatif que le modèle analytique [3,4], il permet de valider

le modèle physique retenu pour l'étude théorique. Il offre une approche complémentaire également aux simulations 2D de CHIC.

La diminution globale du taux de croissance (CHBr) est expliquée par la diminution des sauts de densité dans la zone d'ablation et l'augmentation de la vitesse d'ablation due au transport radiatif. La courbe de dispersion obtenue comporte une bande de nombres d'onde plus stables, pour des longueurs d'onde de l'ordre de la taille du plateau. Cette zone pourrait correspondre à un couplage des perturbations aux deux fronts.

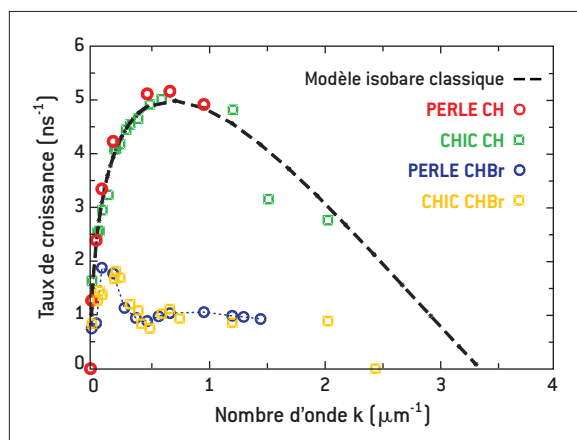
### Conclusion

L'étude théorique et numérique de la dynamique de matériaux de Z modéré a mis en évidence la contribution du flux radiatif dans la formation et l'évolution d'une zone d'ablation à deux fronts. Des simulations numériques confirment la réduction significative des taux de croissance dans le cas du plastique dopé et exhibent une zone de modes plus stables liée au DFA. Le prolongement de cette étude consiste d'une part à développer un modèle analytique de l'IRTA pour cette structure, d'autre part à définir des cibles utilisant ces ablateurs.

### RÉFÉRENCES

- [1] S. FUJIOKA *et al.*, "Suppression of Rayleigh-Taylor instability due to radiative ablation in brominated plastic targets", *Phys. Plasmas*, **11**, p. 2814-2822 (2004).
- [2] P.-H. MAIRE *et al.*, "A cell-centered arbitrary Lagrangian-Eulerian (ALE) method", *Int. J. Numer. Meth. Fluids*, **56**, p.1161-1166 (2008).
- [3] J. SANZ *et al.*, "radiation hydrodynamic theory of double ablation fronts in direct drive inertial fusion", *Phys. Plasmas*, **16**, 082704 (2009).
- [4] V. DREAN, "Dynamique et stabilité des structures à double fronts d'ablation en fusion par confinement inertiel en attaque directe", Thèse de l'université Bordeaux 1 (2009).
- [5] M. OLAZABAL-LOUMÉ, L. HALLO, "Stability study of planar targets using standard and adiabatic shaping pulses", *Phys. Plasmas*, **14**, 102705 (2007).

Figure 3. Courbes de dispersion obtenues pour une plaque de plastique (CH) et de plastique dopé au brome (CHBr) pour une intensité laser de 100 TW/cm<sup>2</sup> (simulations numériques CHIC et PERLE; pour le plastique, résultat du modèle classique).



# Couplage de l'effet Landau avec l'amplification Raman

L'interaction d'une impulsion laser intense avec un plasma est un phénomène physique complexe pour lequel la simulation numérique joue un rôle essentiel. Son étude constitue un champ d'investigation encore largement ouvert pour les mathématiques appliquées et l'analyse numérique fine. À titre d'exemple, nous nous intéressons ici à différents problèmes numériques soulevés par la simulation numérique du couplage entre l'amplification Raman et l'amortissement Landau.

R. Belaouar École Polytechnique, Palaiseau

T. Colin LRC M03, Laboratoire de Mathématiques Appliquées, Université Bordeaux 1

G. Gallice CEA - CESTA

Afin de simuler numériquement une expérience de fusion par confinement inertiel (FCI), il est nécessaire de disposer de modèles physico-numériques efficaces et précis. Les équations de Vlasov-Maxwell mettent en jeu toute la physique nécessaire à la modélisation d'un problème de FCI, mais sont très coûteuses et limitées à des simulations sur des échelles spatio-temporelles réduites. Pour les mêmes raisons, les équations d'Euler-Maxwell sont peu appropriées. Il est alors nécessaire de faire appel à la modélisation via l'utilisation de méthodes asymptotiques conduisant à l'établissement des équations de Zakharov et de ses variantes. Une dérivation rigoureuse du modèle de Zakharov à partir des équations d'Euler-Maxwell est donnée dans [1], et dans [2] une étude mathématique du système de type Zakharov mettant en jeu l'interaction d'une onde laser avec les ondes stimulées Raman et Brillouin, les ondes plasma électroniques (OPE) et les ondes acoustiques ioniques. Bien que déjà très riche, ce modèle reste insuffisant pour prendre en compte des effets cinétiques tels que l'effet Landau qui est un processus d'interaction onde-particules dans les plasmas sous-denses [3]. Il correspond à un mécanisme résonnant entre les électrons du plasma et les ondes plasma électroniques. Il a pour conséquence un échange d'énergie irréversible entre ces électrons et les ondes plasma électroniques et ainsi un amortissement de ces mêmes ondes.

## Modèle mathématique

Le modèle décrivant le couplage de l'amplification Raman avec l'effet Landau est un système à 5 équations. Celles décrivant l'OPE  $E$ , de fréquence  $(\omega_{pe} + \omega_l, k_l)$  et la fonction de distribution  $F_e$  sont données par :

$$\begin{aligned} i(\partial_t E + v \cdot E) + \alpha \partial_{xx} E &= \beta \delta n E + \gamma \partial_x (\bar{A}_r A_0 e^{i(k_l x - \omega_l t)}), \quad (1) \\ \partial_t F_e &= \partial_v (D \partial_v F_e). \end{aligned}$$

Le taux d'amortissement est défini dans l'espace de Fourier par :

$$\hat{v}(\xi, t) = \frac{C_1}{|\xi| |\xi|} \partial_v F_e \left( \frac{\omega_{pe}}{\xi} \right)$$

et le coefficient de diffusion par :

$$D(v, t) = \frac{C_2}{|v|} \left| \hat{E} \left( \xi = \frac{\omega_{pe}}{v}, t \right) \right|$$

avec  $\omega_{pe}$  la fréquence plasma électronique. La relation entre fréquence et vitesse, établie par :

$$\xi = \frac{\omega_{pe}}{v}$$

indique que le processus n'est efficace que lorsque la vitesse de phase des ondes plasma est égale à la vitesse des électrons.

Ici  $A_0$ ,  $A_r$  et  $\delta_n$  sont respectivement l'onde laser, l'onde Raman rétrodiffusée et la composante basse fréquence de la variation de densité ionique. Ces ondes sont couplées entre elles et avec  $E$  par un système de type Zakharov identique à celui de [2].

## Approximation numérique

Les équations précédentes constituent un système non-linéaire par la présence de termes d'interaction au second membre des équations sur  $A_0$ ,  $A_r$  et  $\delta_n$  et aussi du terme d'amortissement Landau. En outre, ce dernier est défini dans l'espace de Fourier via la solution d'une équation de diffusion pour la fonction de distribution  $F_e$ . Cette dualité entre espace direct et espace de Fourier est en soi une des originalités du modèle. Elle est aussi une des raisons de la difficulté de son traitement numérique. Cette complexité rend délicate une prise en compte globale et simultanée de tous les effets physiques considérés dans le modèle. L'approche numérique utilisée ici

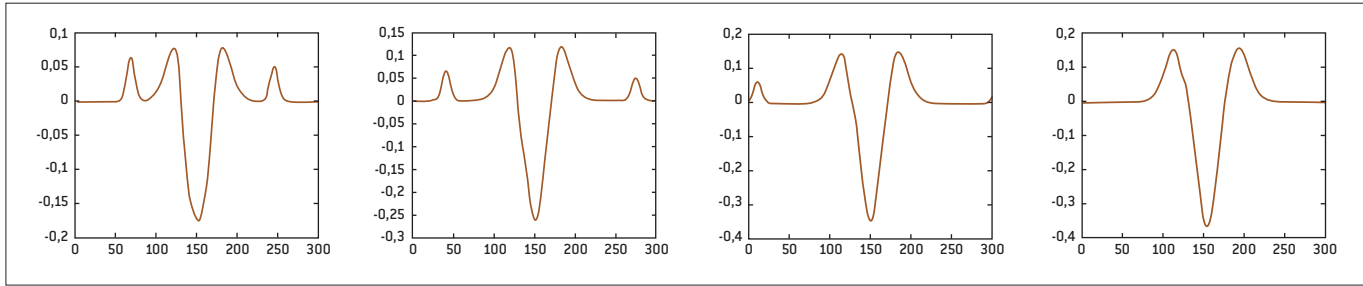


Figure 1. Fluctuations de densité aux temps 95, 126, 162, 208 obtenues avec un modèle simplifié (échelles adimensionnées).

est une technique de «splitting» permettant de traiter d’une part l’effet Landau et d’autre part les équations de champ sur  $A_0$ ,  $A_r$  et  $\delta_n$  et  $E$  en l’absence d’effet Landau. Dans la première étape, l’équation de diffusion sur  $F_e$  est résolue pour  $E$  donné. La deuxième étape consiste à évaluer le taux d’amortissement Landau dans l’espace de Fourier, et ainsi faire évoluer le champ  $E$  fréquence par fréquence. La dernière étape met à jour sur un pas de temps les champs  $A_0$ ,  $A_r$  et  $\delta_n$  à l’aide du schéma conservatif proposé dans [4].

Cette technique, aisée à implémenter, permet d’obtenir une méthode numérique satisfaisant une propriété de décroissance d’énergie comme attendu, et par conséquent une bonne stabilité numérique [5].

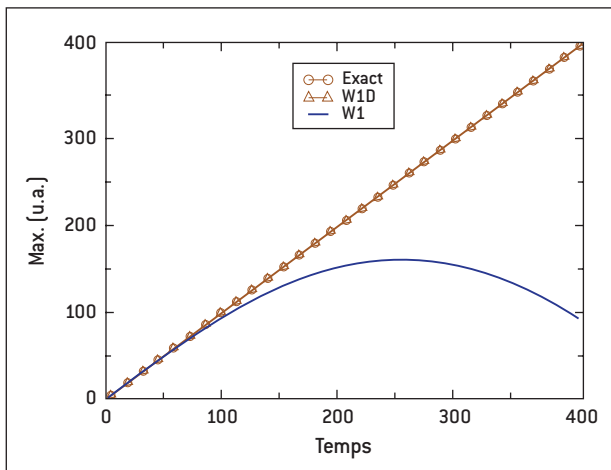


Figure 2. Solutions obtenues pour un modèle simplifié avec les conditions d’accord de phase discrète et continue (échelles adimensionnées).

Au-delà des difficultés intrinsèques dues aux non-linéarités rappelées plus haut, certains points délicats doivent être traités. Mentionnons tout d’abord les conditions limites. En effet, les temps physiques de simulation sont pilotés par les ondes acoustiques ioniques qui ont une vitesse de propagation bien plus petite que celles des ondes laser  $A_0$ ,  $A_r$ . Les domaines de calcul étant finis, ces ondes laser en franchissent les bords, et il importe qu’il n’y ait pas d’onde parasite réfléchi vers l’intérieur du domaine. Des conditions limites absorbantes d’ordre 1 ont été développées dans ce but (figure 1).

Le dernier point concerne la condition d’accord de phase. En effet, l’amplification Raman est une croissance du champ  $A_r$  qui correspond à une décomposition de l’onde laser  $A_0$  en une onde électromagnétique rétrodiffusée et une OPE  $E$ . La condition d’accord de phase pour que cette interaction résonnante ait lieu est donnée par  $\omega_1 = \alpha k_1^2$ . Dans le cas discret, si l’on veut garantir une croissance efficace, il est nécessaire de remplacer dans (1) cette condition par une condition d’accord de phase discrète donnée par :

$$\omega_{1d} = \frac{2}{\Delta t} \arctan\left(\frac{\alpha \Delta t}{\Delta x^2} (1 - \cos(k_1 \Delta x))\right) \text{ (figure 2).}$$

RÉFÉRENCES

[1] B. TEXIER, “Derivation of the Zakharov equations”, ARMA, **184**, p. 121-183 [2007].  
 [2] M. COLIN, T. COLIN, “On a quasilinear Zakharov system arising in plasma physics”, Diff. Int. Equ., **17**, p. 297-330 [2004].  
 [3] J.-L. DELCROIX, A. BERS, Physique des plasmas, CNRS, [1994].  
 [4] M. COLIN, T. COLIN, “A numerical model for the Raman amplification for Laser-plasma Interaction”, J. Comp. App. Math., **193**, p. 535-562 [2006].  
 [5] R. BELAOUAR, T. COLIN, G. GALLICE, “Numerical coupling of Landau damping and Raman amplification”, J. Comp. Phys., **228**, p. 387-405 [2009].

# Étude de l'opacité d'un mélange de fer et de magnésium chauffé radiativement

L'opacité est une grandeur physique fondamentale pour décrire le transport de l'énergie dans les plasmas à haute densité d'énergie. Le besoin de calculs précis d'opacité est partagé par différents domaines de recherche tels que la modélisation des intérieurs stellaires ou celle de l'évolution des plasmas de laboratoire. La précision d'un calcul d'opacité peut être évaluée grâce à des comparaisons code-à-code. Ces comparaisons sont le plus souvent réalisées sur des grandeurs moyennes. Leur intérêt est ainsi limité par le fait qu'entre deux codes de même niveau de sophistication, le nombre et la nature des approximations qu'ils mettent en jeu, et qui les différencient peuvent conduire à des résultats théoriques comparables par simple effet de compensation. Dans ces conditions, seul le résultat d'une mesure de qualité permet de discriminer entre les différents calculs.

- C. Blancard • Ph. Cossé • G. Faussurier CEA - DAM Île-de-France  
 J.E. Bailey • G.A. Rochau Sandia National Laboratories, Albuquerque, New Mexico, USA  
 R.C. Mancini University of Nevada, Reno, Nevada, USA  
 C.A. Iglesias Lawrence Livermore National Laboratory, University of California, Livermore, California, USA  
 J.J. MacFarlane • I.E. Golovkin Prism Computational Sciences, Madison, Wisconsin, USA

Une façon de tester un calcul d'opacité consiste à comparer, sur une gamme plus ou moins étendue de longueurs d'onde, la transmission spectrale mesurée d'un échantillon bien caractérisé avec celle déduite du calcul tenant compte de la résolution finie du dispositif expérimental. Très récemment, une expérience réalisée auprès du Z-pinch du Sandia National Laboratory par l'équipe de J. Bailey, a permis de mesurer la transmission spectrale d'un mélange de fer et de magnésium porté à une température supérieure à 150 eV [1]. Un exemple de transmission spectrale mesurée par l'équipe de J. Bailey est présenté sur la **figure 1**. Les raies d'absorption en couche *K* du magnésium sont observées en-deçà de 9,4 Å. Au-delà de cette valeur, l'absorption en couche *L* de différents ions du fer est clairement visible. La température et la densité électroniques de l'échantillon sont évaluées grâce à l'analyse des raies d'absorption du magnésium. La densité électronique,  $6,9 \pm 1,7 \cdot 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ , est déduite de l'analyse des profils des raies héliumöide  $\text{He}\beta, \gamma, \delta$  pour lesquels l'élargissement par effet Stark est important. La densité électronique étant connue, la température électronique,  $156 \pm 6 \text{ eV}$ , est déduite de l'analyse de différents rapports de raies (ex.  $\text{Ly}\alpha/\text{He}\beta$ ) [2,3].

La **figure 2** regroupe la transmission spectrale mesurée du mélange dans le domaine des raies d'absorption du fer ainsi que celles déduites des résultats de calcul du code OPAS développé au CEA ainsi que des codes OPAL [4], PRISMSPECT [5] et MUTA [6]. Tous ces calculs supposent le mélange

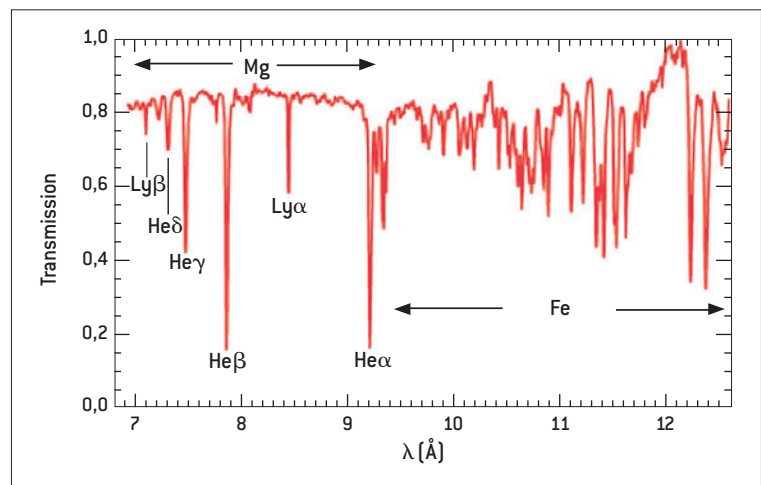
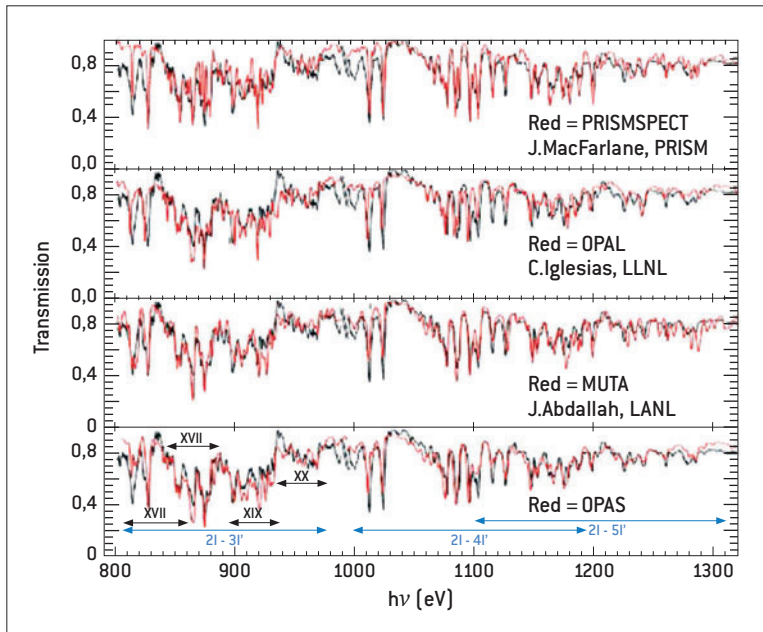


Figure 1. Transmission spectrale mesurée d'un mélange de magnésium et de fer.

à l'équilibre thermodynamique local. Ils correspondent à une température de 150 eV et à une densité électronique de  $8,6 \cdot 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ . Dans le cas présent, nous observons un bon accord entre les transmissions spectrales mesurées et calculées. Les quatre codes, qui tous décrivent les raies d'absorption en couplage intermédiaire, indiquent que les nombreuses structures d'absorption émanent de transitions du type  $2l - 3l'$  en-dessous de 990 eV et de transitions du type  $2l - 4l'$  et  $2l - 5l'$  au-dessus de cette valeur comme indiqué sur la **figure 2**. En ce qui concerne les transitions  $2l - 3l'$ , les contributions de nombreux degrés de charge présents dans le plasma sont clairement identifiables. Ainsi, dans le domaine 810 - 830 eV, nous observons principalement les transitions  $2p - 3d$  dans le fer néonoïde ( $\text{FeXVII}$ ). De plus, ce degré de charge est principalement responsable des deux structures entre 1000 et 1030 eV caractéristiques de transitions  $2p - 4d$ . Nous observons que tous les codes restituent difficilement le spectre d'absorption

expérimental dans ces deux domaines d'énergies de photon. Pour réconcilier l'absorption calculée avec celle mesurée, il faut que le  $\text{Fe}^{14+}$  ( $\text{FeXV}$ ) contribue à hauteur de 4% à la distribution ionique dans le plasma. Si la densité électronique est conservée, cette valeur ne peut être atteinte qu'avec une température de 130 eV. Si l'existence de gradients de température dans l'échantillon au cours de la mesure est inévitable, nous pouvons cependant objecter qu'une variation de l'ordre de 20% de la température affecterait notablement les structures d'absorption du Mg, lesquelles sont par ailleurs correctement restituées avec un seul couple densité-température.

Les potentialités du code OPAS ont pu être testées, dans le cadre d'une collaboration CEA - DAM / DOE-NNSA, en comparant les transmissions spectrales mesurées et calculées d'un mélange de magnésium et de fer au voisinage des seuils  $K$  du Mg et  $L$  du Fe à une température de 150 eV et une densité électronique de  $8,6 \cdot 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ . De nouvelles expériences ainsi que la mise en œuvre d'un nouveau type de cibles devraient permettre d'atteindre des températures et surtout des densités plus élevées. Ces conditions thermodynamiques seront ainsi favorables au test du traitement des effets de l'environnement plasma sur le calcul des profils de raie.



**Figure 2.** Transmissions spectrales d'un mélange de magnésium et de fer dans le domaine des raies d'absorption  $2p \rightarrow nl$  avec  $n \geq 3$  et  $l = s, d$  du fer. La mesure (en noir) est comparée aux résultats des calculs (en rouge) OPAL [4], PRISM/SPECT [5], MUTA [6] et OPAS réalisés à l'équilibre thermodynamique local à une température de 150 eV et à une densité électronique égale à  $8,6 \cdot 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ .

## RÉFÉRENCES

- [1] J.E. BAILEY *et al.*, "Iron-Plasma Transmission Measurements at Temperatures Above 150 eV", *Phys. Rev. Lett.*, **99**, 265002 [2007].
- [2] J.E. BAILEY *et al.*, "Diagnosis of x-ray heated Mg/Fe opacity research plasmas", *Rev. Sci. Instrum.*, **79**, 113104 [2008].
- [3] J.E. BAILEY *et al.*, "Experimental investigation of opacity models for stellar interior, inertial fusion, and high energy density plasmas", *Phys. Plasmas*, **16**, 058101 [2009].
- [4] C.A. IGLESIAS, F.J. ROGERS, "Updated OPAL opacities", *Astrophys. J.*, **464**, p. 943-953 [1996].
- [5] J.J. MACFARLANE *et al.*, "Simulation of the ionization dynamics of aluminium irradiated by intense short-pulse laser", Proceedings of Inertial Fusion and Science Applications 2003, American Nuclear Society, La Grange Park IL, 2004.
- [6] S. MAZEVET, J. ABDALLAH, "Mixed UTA and detailed line treatment for mid-Z opacity and spectral calculations", *J. Phys.*, **B 39**, p. 3419-3429 [2006].

# Opacité radiative des plasmas chauds : des approches statistiques aux calculs détaillés

Les spectres d'absorption et d'émission des plasmas d'ions multichargés comprennent un grand nombre de raies dipolaires électriques et de configurations, imposant de recourir à des méthodes globales. Nous avons étudié l'effet des moments d'ordre élevé de la distribution des raies sur la modélisation des faisceaux de transitions, et amélioré le traitement des interactions électron-électron dans le cadre de l'approche des superconfigurations. Nous avons également proposé des méthodes numériques efficaces pour dénombrer les niveaux et les états des ions et par conséquent le nombre de raies d'un faisceau. Ces études ont pour objectif de développer un code de calcul d'opacité hybride combinant l'approche [statistique] des superconfigurations et le calcul [détaillé] de la structure atomique.

J.-C. Pain • F. Gilleron • Q. Porcherot CEA - DAM Île-de-France

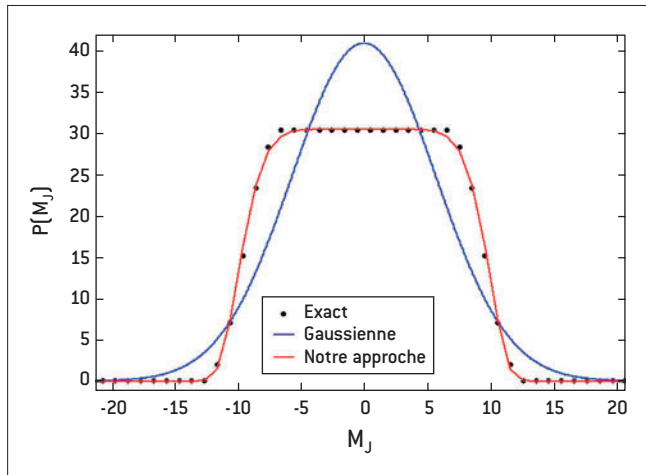
Le nombre de niveaux et de raies dipolaires-électriques (E1) est considérable surtout dans les plasmas ayant des configurations électroniques avec une ou plusieurs couches ouvertes très dégénérées. Heureusement, les raies coalescent alors en une structure spectrale non résolue et il est possible de regrouper les niveaux en configurations, et les raies entre deux configurations en faisceaux de transitions. Parfois, la coalescence des raies est imposée par leurs élargissements physiques. C'est le cas des plasmas denses, pour lesquels l'effet Stark électronique domine. Chaque faisceau peut être modélisé de manière statistique par une enveloppe continue dont les deux premiers moments sont calculés en utilisant les techniques de seconde quantification de Judd, l'algèbre de Racah et les méthodes graphiques de Jucys. Dans ce formalisme (UTA : Unresolved Transition Arrays), la distribution est souvent choisie Gaussienne, mais cela impose une asymétrie et un aplatissement du faisceau qui ne sont pas toujours réalistes. Nous avons mené une étude de l'impact des moments d'ordre  $>2$  en suggérant d'autres distributions (Hypergaussienne, Pearson IV, etc.) [1]. Cette modélisation a également été appliquée au calcul des pertes radiatives [2]. La prolifération des niveaux et des raies atteint son paroxysme lorsque le nombre de configurations (et donc de faisceaux) devient à son tour considérable. Une solution consiste à rassembler les

configurations en superconfigurations (SC). L'ensemble des raies, associées à un saut mono-électronique donné entre deux SCs, représente un superfaisceau de transitions (ou STA : Super Transition Array) modélisé par une distribution statistique dont les deux premiers moments (centre de gravité et variance) s'expriment à l'aide de fonctions de partition. En utilisant notre algorithme récursif robuste de calcul des fonctions de partition et l'approche variationnelle de Jensen-Feynman [3], nous avons amélioré la prise en compte des interactions électron-électron dans la théorie STA.

## Modélisation d'un faisceau de transitions : les raies détaillées

Le spectre d'un plasma (en absorption ou émission) peut contenir des faisceaux riches en raies, pour lesquels une approche globale est parfaitement adaptée, et d'autres comportant une poignée de raies, nécessitant la diagonalisation de la matrice hamiltonienne. L'estimation du nombre de raies d'un faisceau est un élément important (avec les élargissements physiques : Doppler, Stark, etc.) pour décider du calcul détaillé ou non du faisceau, tout comme le nombre de niveaux de moment angulaire  $J$  fixé qui constitue la taille d'un bloc de la matrice à diagonaliser. Cela nous a amené à développer des algorithmes rapides de calcul des termes spectroscopiques  $LS$  et des niveaux  $J$  [4]. Nous avons également étendu la modélisation

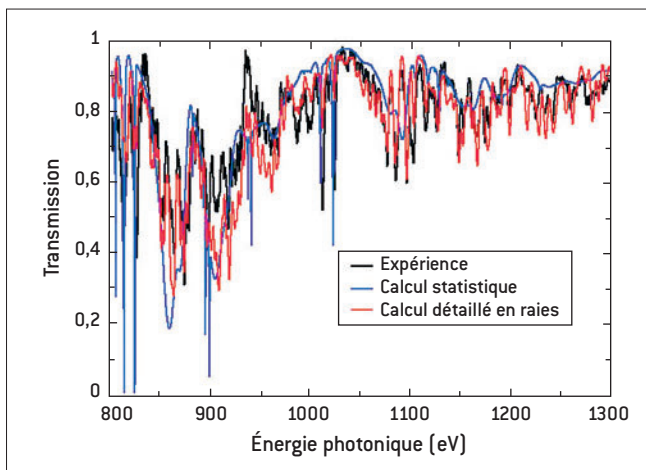




statistique de la distribution des états quantiques pour traiter des configurations comportant des sous-couches ouvertes de grand moment cinétique orbital (voir [figure 1](#) le cas de la configuration  $p^2m$ ).

### Élaboration d'un modèle hybride

Le travail de thèse de Q. Porcherot [\[5\]](#) consiste à développer un modèle de calcul d'opacité proposant le meilleur compromis entre précision et temps de calcul. Il s'agit de coupler le code d'opacité SCO (SuperConfigurations Opacity) écrit par T. Blenski *et al.* [\[6\]](#), fondé sur la théorie STA, à des calculs détaillés. Cela implique de définir des critères pour décider de la nécessité du traitement détaillé des raies et cerner la validité des approches statistiques. Les données nécessaires au calcul des



**Figure 2.** Comparaison entre un calcul statistique (SCO), un calcul détaillé préliminaire [\[5\]](#) et un spectre expérimental (Z-pinch) de fer à  $T=155$  eV et  $\rho = 0,05$  g/cm<sup>3</sup> obtenu par Bailey *et al.* [\[9\]](#).

**Figure 1.** Modélisation de la distribution des projections  $M_J$  du moment angulaire  $J$  par une fonction Gaussienne et une fonction Hypergaussienne pour la configuration  $p^2m$  (une orbitale  $m$  correspond à  $l = 9$ ).

faisceaux détaillés (intégrales de Slater, de spin-orbite et élément dipolaire) sont calculées et transmises par SCO. Ainsi, les effets d'environnement plasma (écranage) sur les fonctions d'onde sont pris en compte en bénéficiant de la thermodynamique élaborée de SCO. Ensuite, les énergies des niveaux et les raies (position et force) sont calculées par le code de R.D. Cowan [\[7\]](#). L'outil obtenu permettra d'obtenir des opacités précises, requises pour l'astrophysique et la FCI, et d'étudier les propriétés des spectres atomiques complexes. Il renforcera nos capacités d'interprétation de spectres expérimentaux tels que ceux obtenus au Laboratoire pour l'Utilisation des Lasers Intenses de l'École Polytechnique [\[8\]](#) et au Sandia National Laboratory (Z-pinch, voir [figure 2](#)) [\[9\]](#).

### RÉFÉRENCES

- [1] J.-Ch. PAIN, F. GILLERON, J. BAUCHE, C. BAUCHE-ARNOULT, "Effect of third- and fourth- order moments on the modeling of unresolved transition arrays", *High Energy Density Phys.*, **5**, p. 294-301 [2009].
- [2] D. BENREDJEM, A. CALISTI, J.-C. PAIN, F. GILLERON, "Radiative power losses and opacity of mid-Z impurities", *J. Phys.: Conf. Ser.*, à paraître [2010].
- [3] J.-Ch. PAIN, F. GILLERON, G. FAUSSURIER, "Jensen-Feynman approach to the statistics of interacting electrons", *Phys. Rev. E*, **80**, 026703 [2009].
- [4] F. GILLERON, J.-C. PAIN, "Efficient methods for calculating the number of states, levels and lines in atomic configurations", *High Energy Density Phys.*, **5**, p. 320-327 [2009].
- [5] Q. PORCHEROT, "Développement d'un modèle atomique permettant le calcul des propriétés radiatives des plasmas chauds", Thèse de l'École Polytechnique (en cours).
- [6] T. BLENISKI, A. GRIMALDI, F. PERROT, "A Superconfiguration code based on the local density approximation", *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, **65**, p. 91-100 [2000].
- [7] R.D. COWAN, "The Theory of atomic structure and spectra", University of California Press, Berkeley and Los Angeles [1981].
- [8] G. LOISEL *et al.*, "Absorption spectroscopy of mid and neighboring Z plasmas: Iron, nickel, copper and germanium", *High Energy Density Phys.*, **5**, p. 173-181 [2009].
- [9] J.E. BAILEY *et al.*, "Diagnosis of x-ray heated Mg/Fe opacity research plasmas", *Rev. Sci. Instrum.*, **79**, 113101 [2008].

# N = 28 : une fermeture de couche en pleine forme

Les développements technologiques de ces dernières années ont permis de produire des noyaux de plus en plus « exotiques ». Ainsi les noyaux radioactifs présentant 28 neutrons ont pu être produits à des taux permettant leur étude. La dizaine d'années d'efforts expérimentaux et théoriques est aujourd'hui récompensée par une compréhension globale de la structure nucléaire autour du nombre magique  $N = 28$ . Cet article en présente les grandes lignes.

L. Gaodefroy CEA - DAM Île-de-France

## Contexte de l'étude

L'étude de l'évolution de la structure nucléaire de la vallée de stabilité vers les noyaux radioactifs est un axe de recherche important. Bâti sur la connaissance des propriétés des noyaux stables, les modèles nucléaires ont pour socle les nombres dits « magiques ». Comme en physique atomique, ces nombres résultent d'un écart en énergie important, appelé « gap », entre les orbitales sur lesquelles s'agencent les nucléons. On comprend alors qu'un noyau possédant un nombre magique (2, 8, 20, 28, 50, etc.) de protons et/ou de neutrons présente un surcroît de stabilité par rapport à ses voisins. Cependant, à la fin des années 70, l'expérience a montré que les nombres magiques sont susceptibles d'être modifiés lorsque l'on s'éloigne de la vallée de stabilité.

Les conséquences ne sont pas uniquement fondamentales. L'évolution des nombres magiques peut par exemple modifier les sections efficaces de réaction de plusieurs ordres de grandeur.

À défaut de pouvoir étudier les milliers de noyaux liés, il semble nécessaire d'être en mesure de les décrire théoriquement. La difficulté est alors de décrire la structure d'un système à  $N$ -corps alors même que l'on ne sait pas précisément comment interagissent ses constituants. L'approche utilisée en physique nucléaire consiste à ramener le problème à  $N$ -corps à un problème à deux corps interagissant par le biais d'une interaction effective. La validation de ces théories passe par la comparaison aux données expérimentales.

## Résultats expérimentaux

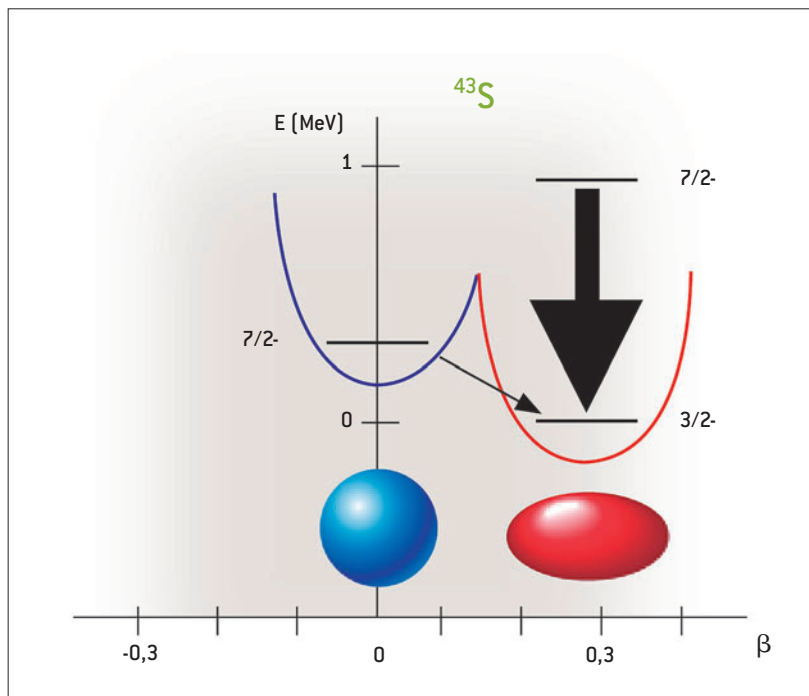
Les expériences menées ces dernières années sur la structure des noyaux ayant 28 neutrons et

leurs voisins, ont permis de dresser un tableau global et cohérent de l'évolution de la structure dans cette région de masse brièvement dépeint dans la suite.

Le dernier isotope stable du calcium, le  $^{48}\text{Ca}$ , comporte 20 protons et 28 neutrons. Il est doublement magique et donc très difficile à exciter, son premier état se trouvant à environ 4 MeV. Comme pour tous les noyaux magiques, la forme d'équilibre du  $^{48}\text{Ca}$  est sphérique.

En retirant 2 protons au  $^{48}\text{Ca}$ , nous aboutissons à l'isotope radioactif de l'argon comportant 46 nucléons : 18 protons et 28 neutrons. Les études sur ce noyau ont montré qu'il est beaucoup plus facile à exciter que son voisin, le  $^{48}\text{Ca}$ . Son premier état excité est abaissé de près de 2,5 MeV par rapport au  $^{48}\text{Ca}$ , et se trouve à environ 1,6 MeV [1]. Il a été montré expérimentalement, à Caen auprès des installations du GANIL, que la taille du gap  $N = 28$  est modestement réduite d'environ 330 keV entre les noyaux de  $^{48}\text{Ca}$  et  $^{46}\text{Ar}$  [2]. Les modèles théoriques reproduisent ces données et montrent que la forme d'équilibre du  $^{46}\text{Ar}$  reste plutôt sphérique [3,4].

En s'éloignant encore de la vallée de stabilité, nous arrivons sur les isotopes du soufre présentant 16 protons. Des expériences ont été réalisées, au GANIL, sur les isotopes de  $^{43}\text{S}$  et  $^{44}\text{S}$  ayant respectivement 27 et 28 neutrons [5]. Les résultats de ces expériences montrent que ces noyaux radioactifs sont loin d'avoir les propriétés attendues pour des noyaux magiques, ou proches d'un nombre magique. En particulier, ils sont le siège du phénomène de coexistence de forme : à basse énergie d'excitation, deux états coexistent dont l'un a la forme sphérique attendue, et l'autre a une forme très



**Figure 1.**  
Coexistence de forme dans le  $^{43}\text{S}$ : l'état déformé (**ellipsoïde rouge**) est énergétiquement favorisé par rapport à la configuration sphérique (**sphère bleue**) du noyau comme démontré expérimentalement dans la référence [5].  
[illustration : Allan Stonebraker [7]]

allongée du type ballon de rugby (**figure 1**). Indubitablement,  $N = 28$  n'a plus rien d'un nombre magique loin de la vallée de stabilité. Ces résultats sont en parfait accord avec les modèles théoriques actuels [3,4].

Finalement, l'isotope 42 du silicium (14 protons et 28 neutrons) a aussi pu être étudié au GANIL. Ce noyau n'étant produit qu'à un taux d'une dizaine d'ions par jour, son étude est une prouesse expérimentale. Elle nous a appris que le premier état excité de ce noyau se trouve à 770 keV, l'une des plus basses énergies d'excitation connues pour un noyau dans cette région de masse [6]. Nous sommes maintenant bien loin des 4 MeV évoqués ci-dessus pour le  $^{48}\text{Ca}$  et donc du caractère magique de  $N = 28$ . L'interprétation théorique de ce résultat montre que le  $^{42}\text{Si}$  est un noyau très déformé, ayant une forme rarement observée en physique nucléaire, celle d'un disque [3, 4].

### Conclusion

L'aboutissement de plusieurs années de recherche sur la structure des noyaux  $N = 28$  révèle une richesse de formes nucléaires, depuis le noyau magique et sphérique de  $^{48}\text{Ca}$ , jusqu'au noyau disque très aplati qu'est le  $^{42}\text{Si}$ , en passant par les noyaux intermédiaires de  $^{43,44}\text{S}$  hésitant entre les formes sphériques et déformées. Ces études ont

permis de valider et d'améliorer les modèles théoriques, donnant lieu aujourd'hui à une compréhension globale et cohérente de la structure nucléaire dans cette région de masse.

L'arrivée prochaine de nouvelles générations d'accélérateurs, tel que SPIRAL2 au GANIL, permettra de transposer ces études à des noyaux pour l'instant inaccessibles.

### RÉFÉRENCES

- [1] H. SCHEIT *et al.*, "New region of deformation: the neutron-rich sulfur isotopes", *Phys. Rev. Lett.*, **77**, p. 3967-3970 (1996).
- [2] L. GAUDEFROY *et al.*, "Reduction of the spin-orbit splittings at the  $N=28$  shell closure", *Phys. Rev. Lett.*, **97**, 092501 (2006).
- [3] F. NOWACKI *et al.*, "New effective interaction for  $0h\omega$  shell model calculations in the sd-pf valence space", *Phys. Rev. C*, **79**, 014310 (2009).
- [4] S. PÉRU *et al.*, "Evolution of the  $N=20$  and  $N=28$  shell closures in neutron-rich nuclei", *Eur. Phys. J. A*, **9**, p. 35-47 (2000).
- [5] L. GAUDEFROY *et al.*, "Shell erosion and shape coexistence in  $^{43}\text{S}$ ", *Phys. Rev. Lett.*, **102**, 092501 (2009).
- [6] B. BASTIN *et al.*, "Collapse of the  $N=28$  shell closure in  $^{42}\text{Si}$ ", *Phys. Rev. Lett.*, **99**, 022503 (2007).
- [7] P. MANTICA, "Peaceful coexistence of nuclear shapes", *Physics 2*, 18 (2009).

# Spectres *ab initio* d'absorption X d'un plasma dense d'aluminium

Les plasmas denses sont des systèmes complexes, difficiles à caractériser expérimentalement. Les techniques de calcul dites « *ab initio* » permettent de calculer des grandeurs directement mesurables par l'expérience tout en amenant de précieuses informations sur la structure microscopique des matériaux. Le développement des calculateurs massivement parallèles a permis d'étendre leur domaine d'application avec succès, de la physique du solide à la physique des plasmas denses. Les spectres d'absorption X, tels que le XANES (X-ray Absorption Near Edge Spectroscopy), sont couramment mesurés pour caractériser avec précision l'état de la matière. Nous avons donc développé une méthode permettant de les calculer en utilisant les techniques dites « *ab initio* ».

V. Recoules • S. Mazevet CEA - DAM Île-de-France

Les spectres d'absorption X près d'un seuil sont très sensibles à la structure électronique et à l'ordre ionique local. Ils peuvent amener des informations importantes sur l'évolution de la structure électronique lorsqu'un système est soumis à des augmentations de température et de pression. Du point de vue théorique, il existe des techniques de calcul de spectres d'absorption des plasmas denses, mais ces techniques nécessitent le plus souvent une connaissance du système *a priori* telle que sa structure ionique ou son degré d'ionisation ; or, ces grandeurs sont difficiles à mesurer directement pour les plasmas denses. Par ailleurs, ces modèles manquent souvent de cohérence puisque plusieurs modèles sont utilisés pour la description des données thermodynamiques et la description de la structure électronique. Le couplage de la dynamique moléculaire *ab initio* utilisant la théorie de la fonctionnelle de densité et de la réponse linéaire a déjà permis de décrire cet état complexe de la matière. En particulier, le calcul des coefficients de transport électronique est maintenant bien maîtrisé. Cette approche permet une description cohérente de la structure ionique et électronique. Jusqu'à maintenant, ces grandeurs se limitaient à la description de phénomènes impliquant uniquement les électrons de valence. L'introduction du formalisme PAW (Projector Augmented Wave) dans le code ABINIT [1] permet d'étendre le domaine d'application de ces calculs pour décrire des phénomènes qui impliquent les électrons de cœur [2].

## Effet de la température

Des calculs sont réalisés pour différentes températures allant de 300 K à 60 000 K le long de l'isochore à la densité du solide ( $\rho_0 = 2,37$ ). La **figure 1** présente l'évolution des spectres XANES de l'aluminium pour des températures autour de son point de fusion (973 K). Les spectres en-dessous de la température de fusion sont très structurés avec un premier pic qui présente 2 maxima et un minimum autour de 1680 eV. Une fois que l'on passe le point de fusion, le spectre est moins structuré. La disparition de la structure du premier pic pourrait être liée à la disparition du pic de second voisin dans la fonction de distribution radiale quand le système passe du solide au liquide. L'autre effet important de la température sur les spectres d'absorption est l'élargissement du

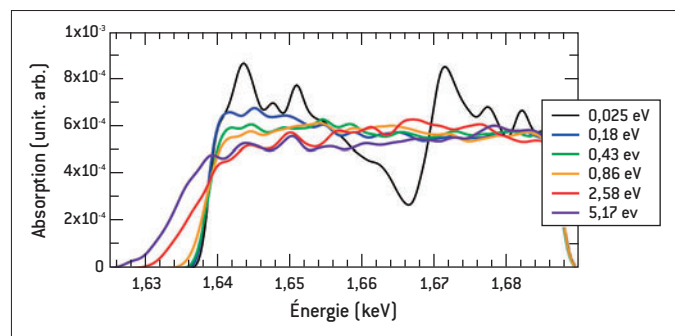
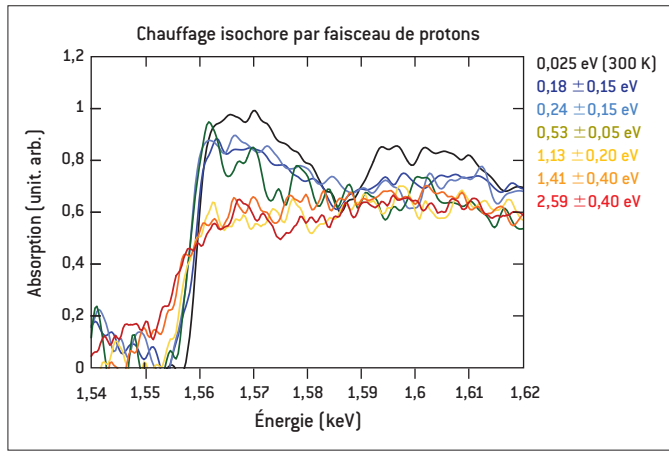


Figure 1. Spectres XANES près du seuil  $K$  de l'aluminium calculés à la densité du solide pour différentes températures.



**Figure 2.** Spectres XANES près du seuil *K* de l'aluminium mesurés à la densité du solide, pour différentes températures.

seuil avec la température. Quand la température augmente, les états sont de plus en plus peuplés en suivant une distribution de Fermi-Dirac. Cet élargissement se retrouve dans la forme du seuil.

Ce comportement a été retrouvé expérimentalement (figure 2) lors d'une expérience de chauffage isochore d'une feuille d'aluminium par faisceau de protons [3]. La comparaison des calculs avec l'expérience a permis une première estimation du temps nécessaire à la perte de corrélation ionique lors de la transition solide-plasma.

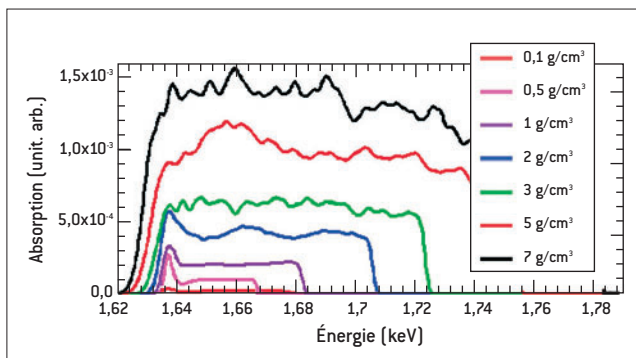
### Effet de la densité

Pour explorer l'effet de la densité, des calculs similaires sont réalisés pour des densités allant de 0,1 à 7 le long de l'isotherme  $T = 17\,000\text{ K}$ . La figure 3 présente l'évolution des spectres d'absorption en fonction de la densité. L'effet le plus important sur les spectres XANES est le déplacement du seuil vers les basses énergies quand la densité augmente. Ce déplacement est le résultat de deux effets : l'augmentation du niveau de Fermi et l'augmentation de l'énergie de l'orbitale *1s*. Pour décrire finement ce dernier effet, il est indispensable d'aller au-delà de l'approximation de cœur gelé utilisée pour construire les pseudo-potentiels à la base de ce type de calcul [4]. Quand

la densité est très faible, une structure dite de pré-seuil apparaît. C'est la signature d'une transition de l'orbitale *1s* vers une orbitale *3p* qui reprend son caractère atomique quand le système se détend. La disparition de cette structure de pré-seuil avec la densité est la manifestation de l'ionisation par la pression [5]. Des expériences permettant de mesurer cet effet sont actuellement en cours au Laboratoire pour l'utilisation des lasers intenses (LULI).

### Conclusion

Nous avons développé une méthode pour le calcul de spectres d'absorption X près d'un seuil en utilisant les techniques de dynamique moléculaire *ab initio*. Ces calculs tirent profit de l'implémentation des techniques PAW dans le code de structure électronique ABINIT. La forme du spectre est liée à la structure ionique de l'aluminium : il change de manière drastique quand le système passe de l'état solide à l'état liquide et plasma. L'effet de la densité sur les spectres XANES est différent. La densité ne modifie pas la forme du seuil, mais induit un déplacement vers les basses énergies. L'ensemble de ces calculs permet d'avoir accès à des temps caractéristiques de changement de phase, et offre un diagnostic pour des effets fins tels que l'ionisation par la pression.



**Figure 3.** Spectres XANES près du seuil *K* de l'aluminium calculés pour différentes masses volumiques, pour une température de 17 000 K (1,5 eV).

### RÉFÉRENCES

[1] X. GONZE *et al.*, "ABINIT: First principles approach to material and nano system properties", *Comput. Mater. Sci.*, **180**, p. 2582-2615 [2009].  
 [2] S. MAZEVET, M. TORRENT, V. RECOULES, F. JOLLET, "Calculation of the transport properties within PAW formalism", *High Energy Density Physics*, **6**, p. 84-88 [2010].  
 [3] A. MANCIC, "Picosecond short-range Disorder in isochorically heated aluminum at solid density", *Phys. Rev. Lett.*, **104**, 035002 [2010].  
 [4] V. RECOULES, S. MAZEVET, "Temperature and density dependence of XANES spectra in warm dense aluminum plasmas", *Phys. Rev. B*, **80**, 064110 [2009].  
 [5] S. MAZEVET, G. ZÉRAH, "Ab initio simulations of the K-edge shift along the aluminum Hugoniot", *Phys. Rev. Lett.*, **101**, 155001 [2008].

# Modélisation *ab initio* du diagramme de phase solide à basse pression et haute température du béryllium

Le béryllium a récemment été pressenti comme ablateur potentiel dans les capsules du NIF (National Ignition Facility), ce qui a engendré la publication de nombreux travaux. Dans le cadre de la construction d'équations d'états multiphasées prédictives, nous avons construit, à partir d'une modélisation entièrement *ab initio*, l'équation d'état et les modules élastiques de ce matériau. Nous nous concentrons ici sur une question encore ouverte : l'existence d'une phase cubique centrée stable à basse pression et haute température.

G. Robert • P. Legrand • S. Bernard CEA - DAM Île-de-France

À pression et température ambiantes, le béryllium adopte une structure hexagonale compacte (*hc*:  $\alpha$ ) [1]. Vers  $T = 1530 \pm 10$  K, la phase *hc* devient cubique centrée (*cc*:  $\beta$ ) avant de fondre à  $T = 1560$  K. L'isotherme 300 K (déterminée expérimentalement en cellules à enclumes de diamant – CED) jusqu'à 180 GPa [2] semble établie. Paradoxalement, le diagramme de phases à basse pression est mal connu.

Les contours du domaine d'existence de la phase  $\beta$  restent à établir. Les mesures, déjà anciennes, concernant la pente de la ligne de transition en fonction de la pression, sont contradictoires et ne couvrent qu'un faible domaine en pression : la pente de la ligne de transition est positive selon Abey [3] et négative selon François et Contre [1]. Aucune de ces deux expériences ne délimite la phase  $\beta$  en pression. Cependant, le domaine d'existence de la phase  $\beta$  est borné par défaut par d'autres expériences plus récentes : ni les expériences effectuées en CED, entre 15 et 50 GPa et ce, jusqu'à 2000 K, ni les données sous choc disponibles sur l'Hugoniot jusqu'à 35 GPa ne font état d'un changement de phases.

Un certain nombre d'études récentes basées sur la théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT) ont été publiées. Les calculs les plus précis dans l'approximation quasi-harmonique (calcul direct de l'énergie libre *via* la méthode DFPT – perturbation à la DFT) prédisent que la structure cubique centrée est stable sous forte pression [4,5]. À basse pression et température nulle, la phase  $\beta$  est dynamiquement instable (spectre de phonons avec fréquences imaginaires au point *N*). Afin d'évaluer qualitativement, la possibilité d'existence de cette phase dans le domaine qui nous intéresse, nous avons étudié le redressement de cette branche avec la température.

## Résultats

Nous avons tout d'abord vérifié que les courbes de dispersion de phonons de la structure *hc* calculées à la

densité théorique d'équilibre se comparent très bien aux mesures par diffraction de neutrons à 80 K et pression ambiante, et que l'on n'observe aucune instabilité.

En revanche, pour la phase cubique centrée (figure 1), nous observons que, pour les masses volumiques inférieures à  $\approx 2,1$  g.cm<sup>-3</sup>, la fréquence d'un des modes transverses devient imaginaire dans la direction  $\Gamma$ -*N*, ce qui traduit l'instabilité dynamique de cette structure à faible masse volumique.

Pour aller au-delà de l'approximation quasi-harmonique et évaluer l'évolution avec la température de la fréquence de ce mode transverse, nous avons couplé l'utilisation de la méthode dite des phonons froids avec la DFPT : cette méthode relie la variation d'énergie liée à un déplacement atomique à une fréquence en un point (ici le point *N*), et la DFPT permet de calculer l'énergie libre associée à ce déplacement en fonction de la température.

Ainsi, pour une masse volumique donnée, l'énergie libre de Helmholtz  $F(T, \lambda)$ , selon un déplacement atomique  $\lambda$ , s'écrit :

$$F(T, \lambda) = F(T, 0) + A\omega^{1/2}(T)\lambda^2$$

$A$  est une constante et  $\omega$  la fréquence engendrée par le déplacement  $\lambda$ .

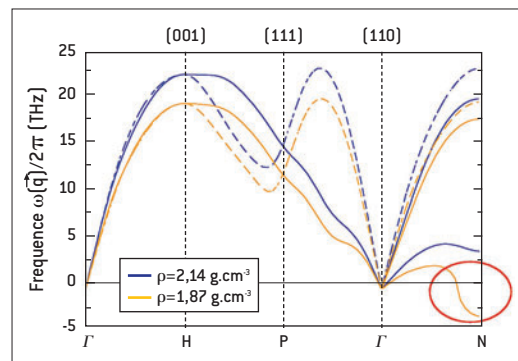


Figure 1. Relations de dispersion de phonons de la structure *cc* calculées en DFPT à température nulle pour deux masses volumiques. Le cercle rouge indique la présence de fréquences imaginaires et par conséquent l'instabilité dynamique de cette structure à basse densité.

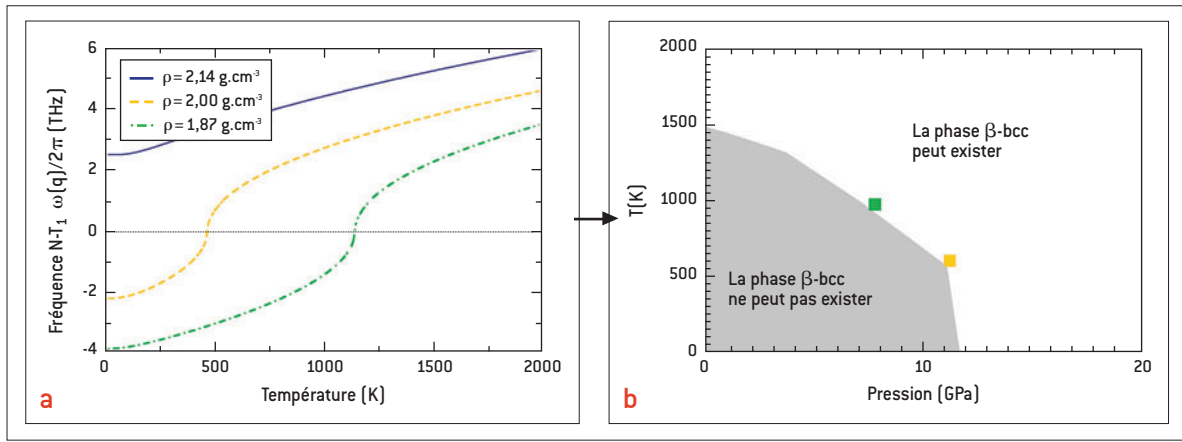


Figure 2. (a) Évolution avec la température de la fréquence au point  $N$  du mode transverse  $T_1$  pour trois isochores ; (b) Domaine potentiel d'existence par des effets anharmoniques de la phase cubique centrée. Les carrés correspondent aux isochores de la figure 2a.

Pour les masses volumiques de  $2 \text{ g.cm}^{-3}$  et  $1,87 \text{ g.cm}^{-3}$ , les fréquences imaginaires disparaissent pour une température  $T_s$  de 500 K et 1100 K respectivement (Figure 2.a), ce qui correspond à des pressions de 12 et 8 GPa. Nous avons ainsi délimité deux régimes (Figure 2.b) : pour des températures inférieures à  $T_s$ , la présence de fréquences imaginaires indique que la phase  $\beta$  est instable ; pour des températures supérieures à  $T_s$ , cette phase a la possibilité d'exister au moins sous forme métastable.

### Discussion

Nous avons déterminé des seuils de température qui sont qualitativement dans le prolongement des résultats expérimentaux de François et Contre [1], donc en contradiction avec ceux obtenus par Abey [3]. Ces résultats peuvent justifier l'existence d'une phase  $\beta$  cubique centrée à basse pression et haute température stabilisée par l'entropie ionique (effets anharmoniques). Si cette phase est

d'énergie libre plus basse que celle de la phase  $hc$ , elle pourrait exister dans une poche bornée par les points de François et Contre, la courbe de fusion et l'isochore  $2,1 \text{ g.cm}^{-3}$  au-delà de laquelle elle n'est plus thermodynamiquement stable, et n'aurait aucune extension à basse température. Si tel est le cas, ces résultats seraient en accord avec les mesures effectuées par Evans et al., évoquées dans [6].

### Conclusion

Au total, nos calculs conduisent au diagramme de phase théorique qui est présenté sur la figure 3. Il est en bon accord avec les autres travaux publiés dans le même formalisme et avec les mesures actuelles du diagramme de phase. Nous avons montré que l'entropie ionique pourrait stabiliser une phase cubique centrée à basse pression et haute température [7]. Il serait intéressant que de nouvelles expériences viennent le confirmer.

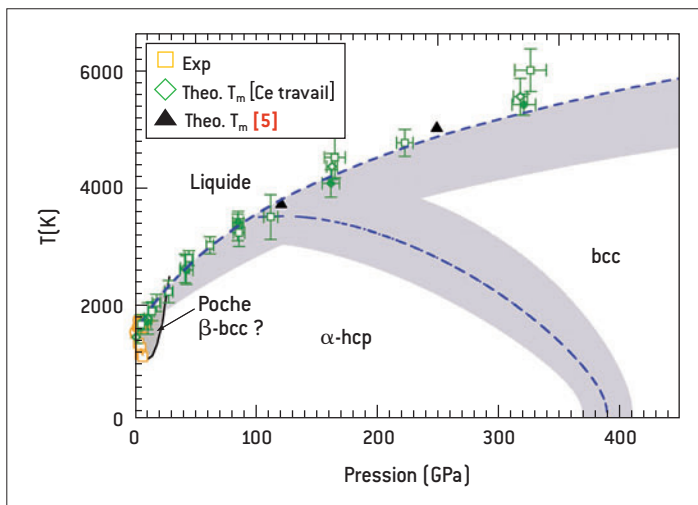


Figure 3. Diagramme de phases expérimental (carrés jaunes) et théorique du béryllium en DFT et dans l'approximation quasi-harmonique. Les symboles verts et les triangles noirs correspondent aux températures de fusion calculées en dynamique moléculaire quantique. Les zones grisées représentent des incertitudes raisonnables sur la position des différentes lignes de transitions de phases prédites par nos calculs.

### RÉFÉRENCES

[1] M. FRANÇOIS, M. CONTRE, "Contribution à l'étude du diagramme pression-température du béryllium pur", Proc. Conférence Intern. Métallurgie du Béryllium, Grenoble 1965, PUF Paris, p. 201-212 [1966].  
 [2] W.J. EVANS, M.J. LIPP, H. CYNN, C.S. YOO, M. SOMAYAZULU, D. HAUSERMANN, G. SHEN, V. PRAKAPENKA, "X-ray diffraction and Raman studies of beryllium : static and elastic properties at high pressures", *Phys. Rev B*, **72**, 94113 [2005].  
 [3] A. ABEY, Pressure Phase Lines and Enthalpies for the  $\alpha\beta$ - and  $\beta$ -liquid transitions in beryllium", UCRL53567 [1984].  
 [4] G. ROBERT, A. SOLLIER, "Equation of state and elastic properties of beryllium from first principles calculations", *J. Phys. IV*, **134**, p. 257-262 [2006].  
 [5] G. ROBERT, A. SOLLIER, Ph. LEGRAND, "Multiphase equation of state and strength properties of beryllium from *ab initio* quantum molecular dynamics calculations", *Shock Compression of condensed Matter-2007*, edited by Mark Elert, AIP Conf. Proc. No 955 (AIP, New York, 2007), p. 97-100 [2007].  
 [6] L.X. BENEDICT, T. OGITSU, A. TRAVE, C.J. WU, P.A. STERNE, E. SCHWEGLER, "Calculations of high-pressure properties of beryllium : construction of a multiphase equation of state", *Phys. Rev. B*, **79**, 064106 [2009].  
 [7] G. ROBERT, P. LEGRAND, S. BERNARD, "Ab initio calculation of the equation of state and elastic moduli of solid beryllium", soumis à *Phys. Rev. B*.

# Précipitation durcissante dans un alliage d'aluminium soudé par faisceau d'électrons

L'alliage d'aluminium 7020 à durcissement structural est particulièrement bien adapté à la réalisation de pièces soudées du fait de sa composition sans cuivre. Le soudage de cet alliage par faisceau d'électrons (FE) sous-entend de bien connaître l'impact du procédé sur les propriétés mécaniques du matériau. Cet article présente quelques résultats obtenus lors d'études menées sur la caractérisation des nanostructures en relation avec les propriétés de la liaison soudée.

S. Ringeval • G. Texier CEA - Valduc  
 V. Vignal ICB, Université de Bourgogne-CNRS, Dijon  
 A. Deschamps SIMAP, INPG-CNRS-UJF, St Martin d'Hères

Les alliages de la série 7xxx contiennent du magnésium, du zinc et du cuivre. Après traitement thermique (TTh), il est possible d'obtenir un alliage avec de très bonnes propriétés mécaniques (résistance et ténacité). Dans cette série, la nuance 7020 ne contient pas de cuivre et, travaillée avec cette dernière, présente deux grands avantages :

- > après TTh, l'alliage possède de très bonnes propriétés mécaniques dues au durcissement structural important provoqué par la précipitation d'intermétalliques (à base de *Mg* et *Zn*) ;
- > cette nuance sans cuivre induit un très bon comportement au soudage (très peu de fissuration à chaud) [1]. Le soudage par FE est ici particulièrement intéressant : les joints obtenus ont une épaisseur importante tout en conservant de bonnes propriétés mécaniques.

Lors de ce soudage, les microstructures des zones fondue (ZF) et affectée thermiquement (ZAT) évoluent fortement. Ainsi, après assemblage, une évolution des précipités est observée, provoquant une modification du comportement mécanique. De plus, les températures atteintes lors du soudage sont telles qu'une partie du *Zn* et du *Mg* de la ZF s'évapore (jusqu'à 20 % pour le *Zn*). La ZF constitue donc une zone particulière dont la composition n'est plus nominale.

Les éventuels TTh post-soudages influencent aussi l'état de la précipitation. La microstructure évolue avec des cinétiques différentes suivant l'histoire thermique du matériau. Ainsi, les états de précipitation du métal de base, de la ZAT et de la ZF peuvent être très différents.

Des études ont donc été réalisées, certaines en collaboration (Université de Bourgogne, SIMAP), afin de mieux comprendre l'impact du soudage et de différents TTh post-soudages sur la microstructure de l'alliage 7020. L'objectif étant à terme de lier la microstructure obtenue aux propriétés mécaniques du matériau.

La compréhension des phénomènes passe par une caractérisation exhaustive des différentes microstructures (après soudage et au cours des TTh). Ceci est délicat car de nombreuses techniques expérimentales doivent être utilisées afin de pouvoir balayer les différentes échelles de la matière, du macroscopique au nanoscopique.

Nos travaux récents présentent les principaux résultats obtenus [2,3,4]. Ceux-ci concernent les variations en éléments chimiques (phénomènes de

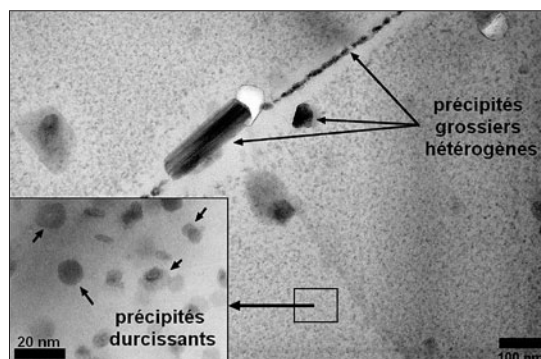
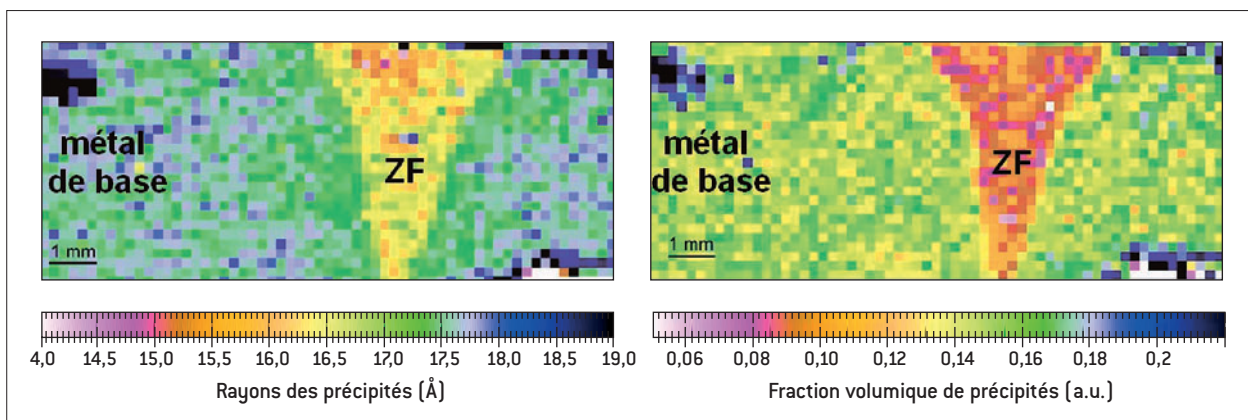


Figure 1. Images MET en champ clair de la zone fondue. Les précipités hétérogènes grossiers et les précipités durcissants très fins apparaissent en sombre.





**Figure 2.** Cartographies SAXS obtenues à l'ESRF. La zone fondue apparaît en couleurs chaudes.

ségrégation liés au soudage), la morphologie et la taille des grains dans les différentes régions, la texture du joint soudé qui diffère de celle du matériau de base et la caractérisation des précipités, qu'ils soient grossiers hétérogènes ou « durcissants ».

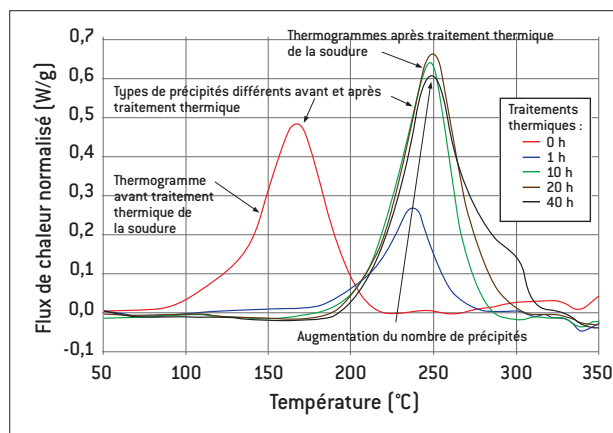
L'accent a été mis sur l'étude de cette précipitation fine durcissante car elle conditionne en grande partie les propriétés de l'alliage. Ces précipités, très fins, de l'ordre de 20 nm, ne peuvent être observés directement qu'à l'aide de la microscopie électronique à transmission (MET) (figure 1).

Ces travaux ont montré que la cinétique de précipitation dépendait fortement de la composition chimique du matériau et de la teneur en solutés. Ainsi, après soudage par FE, l'évaporation du Zn et du Mg se traduit, après TTh post-soudage industriel classique (traitement T6), par des précipités durcissants plus fins et moins nombreux que dans le métal de base. Ces phénomènes ont été quantifiés par SAXS (Small Angle X-ray Scattering) à l'ESRF (European Synchrotron Radiation Facility) (figure 2). Le lien avec la mécanique a pu être réalisé par microdureté. Il a été mis en évidence que cet état de précipitation dégradé diminuait la dureté jusqu'à 25 %.

La caractérisation nanostructurale de la liaison est donc un enjeu primordial pour la qualité des soudures. Toutefois, les études par MET ou SAXS sont coûteuses en moyens et en temps. Une alternative à ces techniques est apportée par la calorimétrie différentielle à balayage (DSC) qui permet, compte tenu des connaissances acquises par ailleurs, un suivi de l'évolution des cinétiques de précipitation et de dissolution (figure 3), apportant ainsi de précieuses informations sur l'état de la nanostructure et donc sur les propriétés mécaniques associées de l'alliage par une approche macroscopique plus globale du matériau.

Nos récents travaux ont montré la nécessité de bien connaître l'alliage 7020 et l'impact des différents procédés (FE, TTh) sur les propriétés du

matériau. Une diminution de l'un des éléments d'alliage conduit à une modification importante de la nanostructure et donc à une baisse importante des propriétés mécaniques. Ces études ont aussi montré le fort impact de la vitesse de trempe et des différents TTh sur les cinétiques de précipitation.



**Figure 3.** Thermogrammes DSC obtenus dans la ZAT d'une liaison soudée autogène en AZ5G. Évolution des états de précipitation au cours du traitement thermique post-soudage.

## RÉFÉRENCES

- [1] G.P. DOLAN, J.S. ROBINSON, "Residual stress reduction in 7175-T73, 6061-T6 and 2017A-T4 aluminium alloys using quench factor analysis", *J. Mater. Process Technol.*, **153-154**, p. 346-351 [2004].
- [2] A. DESCHAMPS, G. TEXIER, S. RINGEVAL, L. DELFAUT-DURUT, "Influence of cooling rate on the precipitation microstructure in a medium strength Al-Zn-Mg alloy", *Mater. Sci. and Eng.*, **A501**, p. 133-139 [2009].
- [3] A. DESCHAMPS, S. RINGEVAL, G. TEXIER, L. DELFAUT-DURUT, "Quantitative characterization of the microstructure of an electron-beam welded medium strength Al-Zn-Mg alloy", *Mater. Sci. and Eng.*, **A517**, p. 361-368 [2009].
- [4] A. STAIGER, C. JOSSE, V. VIGNAL, S. RINGEVAL, "Analyse MEB-EDS d'une liaison soudée en alliage d'aluminium 7020-T652", rapport interne Université de Bourgogne [2009].

# Étude *ab initio* des premières étapes de l'oxydation du silicium

Les calculs *ab initio* permettent d'établir un scénario concernant les premières étapes de l'oxydation du silicium. Ils mettent en évidence une structure semi-hexagonale se formant à la surface du silicium. Celle-ci semble être le chemin naturel vers la formation de l'interface abrupte entre le silicium cristallin (Si) et son oxyde amorphe (SiO<sub>2</sub>).

A. Hemeryck • A. Esteve CNRS-LAAS, Toulouse, France

N. Richard CEA - DAM Île-de-France

M. Djafari Rouhani CNRS-LAAS, Toulouse • Université de Toulouse, France

Y. J. Chabal University of Texas at Dallas, Richardson, USA

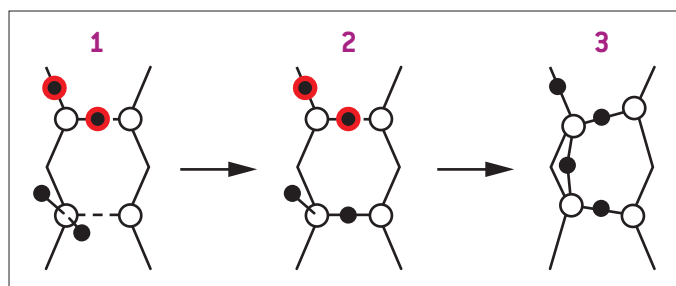
Si le silicium (Si) s'est imposé depuis 50 ans comme étant le matériau incontournable dans le domaine de la microélectronique, c'est notamment grâce à la qualité de son interface avec son oxyde amorphe (SiO<sub>2</sub>). La densité d'états d'interface y est très faible (moins d'une liaison pendante pour 10 000 liaisons). D'un point de vue technologique, cette interface isolant/semiconducteur est à la base de la fabrication du transistor. En physique des matériaux, elle est un système modèle pour étudier la transition ordre/désordre. Malgré tout, les mécanismes chimiques régissant l'oxydation du silicium et l'arrangement atomique à l'interface Si/SiO<sub>2</sub> sont encore très mal connus. Or, c'est la nature de cette interface qui contrôle les propriétés électriques des composants actuels ou futurs à base de silicium. La compréhension de la formation de cette interface est donc fondamentale, surtout dans le cadre de la diminution constante des tailles en microélectronique.

Notre étude a pour but d'identifier les réactions chimiques à l'échelle atomique qui conduisent à la croissance de SiO<sub>2</sub> et donc à la formation de cette interface. Pour cela, la réaction de molécules d'oxygène (O<sub>2</sub>) est observée sur une surface de silicium jusqu'à l'identification du noyau d'oxydation à partir duquel une incorporation totale de l'oxygène devient possible. Notre approche repose sur des calculs *ab initio* dans le cadre théorique de la Théorie de la Fonctionnelle de la Densité (DFT). Les huit atomes de silicium sur le haut de la surface sont reconstruits avec quatre dimères inclinés et un canal entre les rangées de dimères (voir détails de la surface dans [1]).

Le point de départ de nos calculs est une surface de silicium pré-oxydée contenant une structure silanone de forme O=Si-O-Si (figure 1) obtenue après l'adsorption d'une molécule d'oxygène. Des calculs précédents ont montré que cette structure est la plus stable lors de l'incorporation d'une seule molécule O<sub>2</sub> [1]. La formation de cette structure fragilise à la fois la liaison dimère et les liaisons arrières de l'atome de silicium du dimère adjacent à celui contenant la structure silanone. Les barrières en énergie pour les étapes suivantes de l'oxydation seront donc les plus basses pour l'incorporation dans ces liaisons. Selon la position de la seconde molécule d'oxygène avant son incorporation dans la surface, plusieurs positions finales sont possibles. La position d'arrivée sur le dimère adjacent

Figure 1. Vue réduite de la surface montrant seulement deux dimères parallèles.

Les atomes de silicium sont en blanc, les atomes d'oxygène sont en noir, les atomes d'oxygène participant à la structure silanone sont entourés en rouge. [1] Une configuration silanone sur le dimère le plus haut et une configuration en brin sur le dimère le plus bas. [2] Un des atomes en brin s'incorpore dans la liaison dimère. [3] Le dernier atome en brin s'incorpore en formant un pont entre les deux structures (position ADB).



est la plus probable. Dans cette configuration, les atomes se positionnent d'abord en brin (figure 1-1) puis un des deux atomes d'oxygène est incorporé dans la liaison dimère Si-Si (figure 1-2) avec un gain d'énergie net de 4,52 eV et une barrière en énergie de seulement 0,02 eV. À ce moment, trois chemins sont possibles pour l'atome d'oxygène restant en brin :

- > l'incorporation dans l'une ou l'autre des deux liaisons arrières Si-Si ;
- > la formation d'un pont entre les deux dimères (position ADB pour « Adjacent Dimer Bridging »).

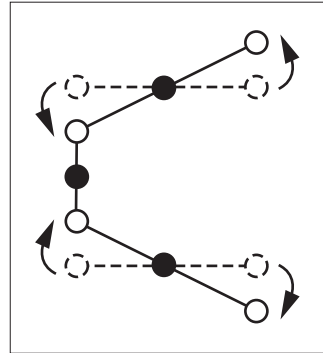
La dernière configuration, décrite dans [2, 3], est importante car elle permet de stabiliser les couches à fort recouvrement (>1 monocouche). En considérant cette structure, nous obtenons la configuration représentée sur la figure 1-3. La barrière d'activation (0,09 eV) est là encore très faible par rapport au gain en énergie (0,74 eV). Cette facilité d'incorporation est à comparer avec le cas où l'oxygène s'incorpore dans l'une des deux liaisons arrières (barrière de 0,63 eV pour un gain de 0,15 eV).

Le processus de formation de la structure ADB nécessite alors deux étapes illustrées sur la figure 2 :

- > la rotation des liaisons pendantes ;
- > la distorsion des deux dimères adjacents.

Ces deux étapes font passer d'un réseau cubique à un réseau semi-hexagonal-SH (figure 2). Cette structure, en accord avec des observations expérimentales [4], semble être le motif naturel sur lequel peut se former un amorphe.

Pour vérifier que ce motif est bien le plus favorable thermodynamiquement, toutes les structures possibles sur ces deux dimères ont été simulées avec quatre oxygènes (figure 3). La structure SH est bien plus stable que toutes les configurations où un à deux atomes d'oxygène sont insérés en liaisons arrières.



**Figure 2.** Illustration schématique de la transition entre les dimères parfaitement alignés [trait pointillé] et les dimères inclinés [trait plein]. Les atomes de silicium sont en blanc, les atomes d'oxygène sont en noir.

Cette étude montre que la transition entre le silicium cubique et son oxyde amorphe s'effectue par l'intermédiaire d'une structure de type semi-hexagonale. Ceci permet d'expliquer l'existence de couches sous-stœchiométriques dans les oxydes natifs ou l'absence de liaisons pendantes à l'interface Si/SiO<sub>2</sub>. La compréhension de ce type de transition cristallin/amorphe devrait nous permettre de mieux appréhender les matériaux complexes (SiGe, SiC...).

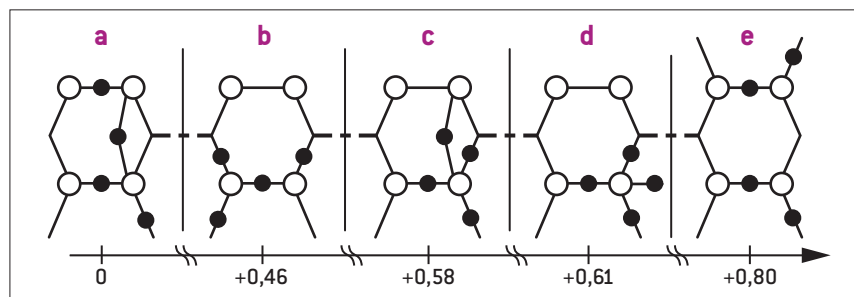
**RÉFÉRENCES**

[1] A. HEMERYCK, A. J. MAYNE, N. RICHARD, A. ESTEVE, Y. J. CHABAL, M. DJAFARI ROUHANI, G. DUJARDIN, G. COMTET, "Difficulty for oxygen to incorporate into the silicon network during initial O<sub>2</sub> oxidation of Si{100}-[2X1]", *J. Chem. Phys.*, **126**, 114707 [2007].

[2] A. HEMERYCK, N. RICHARD, A. ESTEVE, M. DJAFARI ROUHANI, "Multi-scale modeling of oxygen molecule adsorption on a Si{100}-p[2X2] surface", *J. Non-Cryst. Solids*, **353**, p. 594-598 [2007].

[3] T. YAMASAKI, K. KATO, T. UDA, "Oxidation of the Si{001} Surface: Lateral Growth and Formation of P<sub>80</sub> Centers", *Phys. Rev. Lett.*, **91**, 146102 [2003].

[4] D. HOJO, N. TOKUDA, K. YAMABE, "Direct observation of two-dimensional growth at SiO<sub>2</sub>/Si{111} interface", *Thin Solid Films*, **515**, p. 7892-7898 [2007].



**Figure 3.** Stabilité énergétique relative [en eV] des différentes configurations contenant quatre atomes d'oxygène. La configuration la plus stable [a] sert de référence en énergie. Les atomes de silicium sont en blanc, les atomes d'oxygène sont en noir.

# Couches magnétiques à haute perméabilité : une modélisation prédictive

Les récentes avancées dans la modélisation des couches minces ferromagnétiques, nous ont permis d'établir un modèle prenant en compte la dispersion d'anisotropie dans les couches ferromagnétiques. Ce modèle a été validé sur le cas canonique de couches à anisotropie croisée qui ont été réalisées expérimentalement. D'autre part, nous avons pu généraliser une règle s'appliquant aux spectres de perméabilité des matériaux ferromagnétiques, qui permet par la simple mesure de ces spectres de connaître plus en détail la configuration magnétique interne de la matière que par la mesure d'un cycle d'hystérésis.

F. Duverger • V. Dubuget • O. Acher • S. Dubourg • A.-L. Adenot • P. Thibaudeau CEA - Le Ripault  
 A. Thiaville CNRS, Laboratoire de Physique des Solides, Université Paris-Sud, Orsay

Parmi les matériaux magnétiques doux, les couches ferromagnétiques possèdent des propriétés magnétiques importantes sur une grande plage de fréquence. Leur perméabilité magnétique est liée à la précession des spins autour de leur position d'équilibre gouvernée par l'équation de Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG):

$$\frac{d\vec{M}}{dt} = -\gamma \vec{M} \wedge \vec{H} + \alpha \vec{M} \wedge \frac{d\vec{M}}{dt}$$

où  $\gamma$  est le rapport gyromagnétique de l'électron,  $\alpha$  le facteur d'amortissement,  $\vec{M}$  l'aimantation du matériau et  $\vec{H}$  la somme des champs appliqués et des champs effectifs.

Le principal champ effectif est le champ d'anisotropie  $H_K$  orientant l'aimantation statique dans la direction de facile aimantation. Pour une couche mince (plan  $x,y$ ) uniformément aimantée suivant la direction  $y$ , la perméabilité gyromagnétique tirée de l'équation LLG est :

$$\mu_x \approx 1 + \frac{(\gamma M_S)^2}{\gamma H_K \gamma M_S + j\alpha\omega\gamma M_S - \omega^2}$$

où  $\omega$  est la pulsation de l'excitation et  $M_S$  l'aimantation à saturation.

La fréquence de résonance du matériau est  $\frac{\gamma\sqrt{M_S H_K}}{2\pi}$ .

L'ingénierie de la réponse en fréquence de ces matériaux se fait donc en pilotant l'anisotropie magnétique par la composition et les paramètres d'élaboration.

Les couches minces déposées par pulvérisation magnétron peuvent présenter des dispersions d'anisotropie dans l'épaisseur liée à leur structure, qui conduisent à une inhomogénéité de l'aimantation. Nous avons réalisé un modèle numérique capable de prendre en compte cette inhomogénéité, qui a été validé sur le cas canonique des couches à anisotropie croisées [1].

## Les couches à anisotropie croisée

Ces couches ont été obtenues par pulvérisation magnétron sur substrat polymère ou verre fixe, que l'on pivotait rapidement de  $90^\circ$  suivant un axe perpendiculaire au substrat à un instant du dépôt. La couche est ainsi scindée en 2 parties, présentant 2 axes d'anisotropie perpendiculaires entre eux.

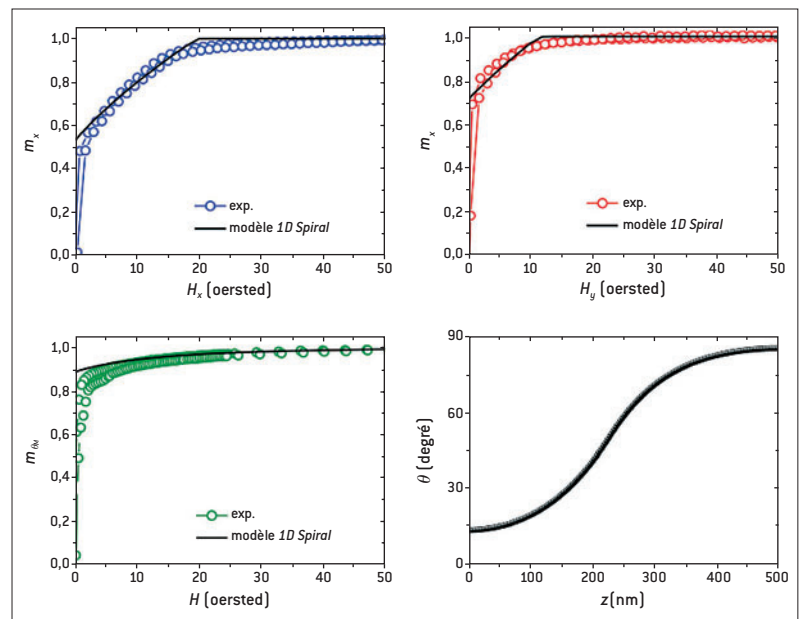
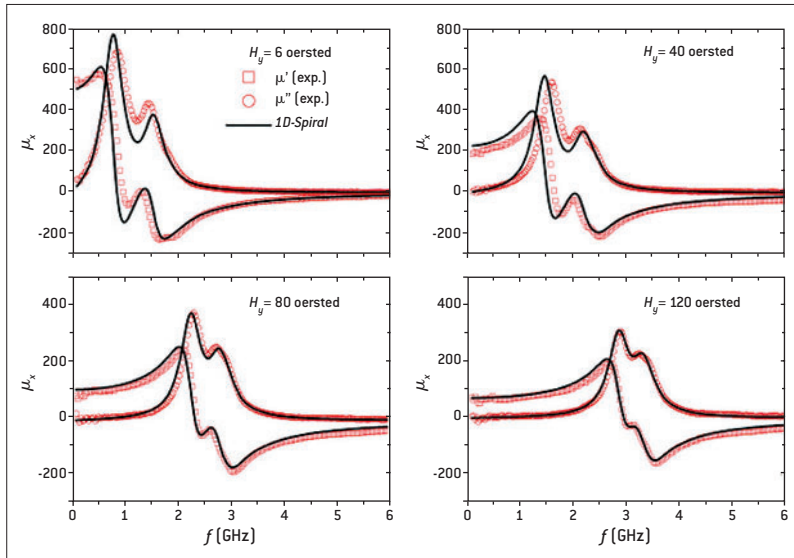


Figure 1. Comparaison des cycles d'hystérésis expérimentaux et du modèle (1D Spiral) selon les 2 axes  $x$  et  $y$  de la couche et selon l'axe de l'aimantation moyenne  $\{\theta_M\}$  - Profil de l'aimantation correspondant, dans l'épaisseur  $z$  de la couche repéré par l'angle  $\theta$  avec l'axe  $x$ .



**Figure 2.** Comparaison des spectres de perméabilités expérimentaux et du modèle [1D-Spiral] pour différentes valeurs du champ extérieur statique.

Les modélisations numériques et analytiques sont rendues relativement simples du fait que la couche est homogène dans les 2 axes de son plan. Dans ce cas, l'expression du champ démagnétisant est identique au cas homogène et seul le terme d'échange est à ajouter.

La partie statique de la modélisation permet d'obtenir le profil d'aimantation dans l'épaisseur et de tracer les cycles d'hystérésis (**figure 1**).

La réponse dynamique du système se décompose en modes de vibration particuliers, dont la perméabilité  $\mu_n$  a la même forme que pour une couche homogène en remplaçant le champ d'anisotropie  $H_K$  par un champ effectif  $H_n$ :

$$\mu_n \approx 1 + \frac{(\gamma M_S)^2}{\gamma H_n \gamma M_S + j\alpha\omega\gamma M_S - \omega^2}$$

La **figure 2** montre la bonne concordance entre le modèle et les spectres expérimentaux. Cette modélisation nous a permis de proposer un modèle de dispersion d'anisotropie par effet magnétostrictif pour rendre compte des spectres hyperfréquences obtenus pour des programmes internes du CEA - DAM.

### Règle de somme applicable à la perméabilité magnétique

Le laboratoire a établi une règle s'appliquant aux spectres de perméabilité des couches minces mais aussi des composites à inclusions ferromagnétiques. Celle-ci a fait l'objet de plusieurs publications dont [2, 3], et s'exprime de la façon suivante :

$$\int_0^\infty \mu''(\omega) \cdot \omega \cdot d\omega = k \frac{\pi}{2} (\gamma M_S)^2$$

Le facteur  $k$  est toujours inférieur à 1 et dépend de la dimensionnalité du matériau.

Pour un matériau massif isotrope  $k = \frac{1}{3}$ .

Pour une couche mince uniformément aimantée  $k = 1$ . Différents facteurs correctifs ont été établis pour traiter des cas particuliers [3].

Grâce à cette règle, on déduit la quantité minimale de matériau magnétique permettant d'atteindre un objectif de performance d'un écran absorbant. En particulier, elle montre le potentiel des matériaux ferromagnétiques à fort  $M_S$ .

Cette règle permet aussi de caractériser plus finement une couche mince inhomogène. En effet, la mesure des spectres de perméabilité suivant les 2 axes  $x$  et  $y$  de son plan permet de remonter aux proportions d'aimantation projetées sur ces 2 axes :

$$\int_0^\infty \mu_x''(\omega) \cdot \omega \cdot d\omega = k \frac{\pi}{2} \langle \cos^2 \varphi \rangle (\gamma M_S)^2$$

$$\int_0^\infty \mu_y''(\omega) \cdot \omega \cdot d\omega = k \frac{\pi}{2} \langle \sin^2 \varphi \rangle (\gamma M_S)^2$$

Ceci a été vérifié sur le cas des couches à anisotropie croisée. Ce type de mesure permet de mettre en évidence la présence d'une dispersion d'aimantation.

### Conclusion

Le développement des couches minces ferromagnétiques pour des applications du CEA - DAM a nécessité la mise en place d'une modélisation plus approfondie que le simple modèle gyromagnétique. Les dispersions liées à la fabrication ont pu être prises en compte avec un outil numérique assez simple. Les règles s'appliquant aux spectres de perméabilité nous permettent de détecter cette dispersion.

### RÉFÉRENCES

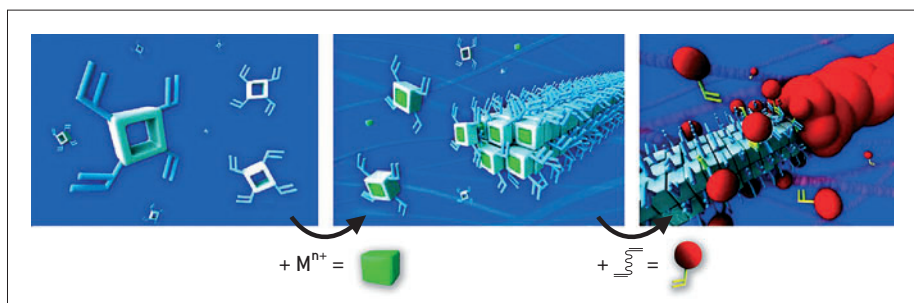
- [1] V. DUBUGET, A. THIAVILLE, F. DUVERGER, S. DUBOURG, O. ACHER, A.-L. ADENOT-ENGELVIN, "Magnetization dynamics of soft films with thickness-dependent anisotropy", *Phys. Rev. B*, **80**(13), 134412 (2009).
- [2] O. ACHER, A.-L. ADENOT, "Bounds on the dynamic properties of magnetic materials", *Phys. Rev. B*, **62**(17), p. 11324-11327 (2000).
- [3] O. ACHER, S. DUBOURG, "Generalization of Snoek's law to ferromagnetic films and composites", *Phys. Rev. B*, **77**(10), 104440 (2008).

# Synthèse de nouveaux matériaux supramoléculaires par auto-assemblage

Dans le cadre du programme Simulation, et en particulier du Projet Cibles Laser, les chercheurs du CEA - Le Ripault, en collaboration avec l'Université de Tours, ont décrit la synthèse de matériaux innovants par auto-assemblage moléculaire non covalent. De tels matériaux supramoléculaires présentent des propriétés chimiques et mécaniques très intéressantes. Leur fonctionnalisation ouvre de belles perspectives dans des domaines allant de la catalyse aux biomatériaux.

A. Balland-Longeau • L. Moreau CEA - Le Ripault

J. Thibonnet Laboratoire de Physico-Chimie des Matériaux et des Biomolécules (PCMB), Université François Rabelais, Tours



Représentation graphique en 3D du mode de synthèse des nouveaux matériaux supramoléculaires.

## Vers de nouveaux matériaux supramoléculaires

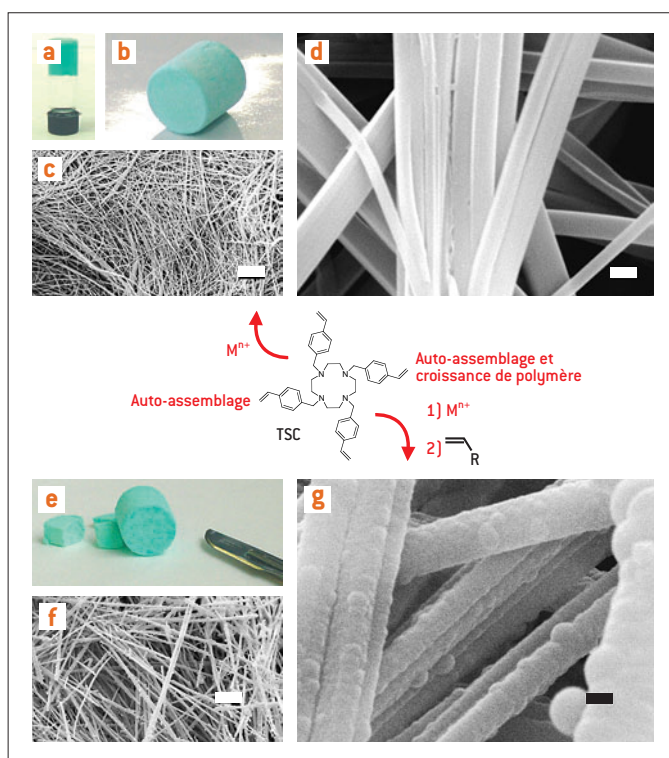
Sur la base de la chimie développée pour les matériaux pour les cibles Laser [1,2], il a été possible d'obtenir des gels par auto-assemblage supramoléculaire d'un ligand à structure spécifique, dérivé du cyclène nommé le TétrastyrilCyclène (TSC). Ce ligand original TSC mis en présence de sels métalliques (chlorures de cuivre, nickel, ou zinc) dans un solvant polaire, permet l'obtention de gels supramoléculaires à température ambiante : il s'agit donc de gels dans lesquels aucune liaison covalente n'intervient, et constitués de fibres supramoléculaires comme en témoignent les analyses associées. Ce processus est connu dans la littérature de la chimie supramoléculaire [3,4].

Les observations par microscope électronique à balayage (MEB) de ces objets (figure 1) montrent un réseau de nanofibres entrelacées, se présentant sous la forme de rubans pouvant atteindre des longueurs voisines du millimètre et quelques dizaines de nanomètres d'épaisseur. La présence du métal et sa répartition homogène, en tant qu'élément constitutif des fibres, ont également été confirmées par microscopie électronique à transmission (MET). Par ailleurs, ces fibres diffractent les rayons X indiquant qu'elles possèdent une structure cristalline et organisée sur

de longues distances, caractéristique du haut degré d'organisation propre aux systèmes supramoléculaires. Étant donné l'affinité des ligands macrocycliques azotés pour les métaux, et compte tenu du rapport Métal/Ligand = 1 observé dans de telles structures fibrillaires, il est possible que les molécules de ligands TSC ainsi que les ions métalliques interagissent suivant une organisation spécifique 1D. De plus, ce type d'organisation permettrait des interactions stabilisantes entre les noyaux aromatiques des ligands. Lors de l'assemblage moléculaire, effectué sans formation de liaisons covalentes puisque les fonctions styréniques du ligand TSC potentiellement polymérisables ne sont pas consommées, il a donc été montré qu'une partie de ces fonctions est présente à la surface des fibres et peut participer à une polymérisation ultérieure.

## Fonctionnalisation des matériaux supramoléculaires

Lorsque ces fibres sont fabriquées dans les mêmes conditions mais cette fois-ci, en présence d'AIBN ( $\alpha, \alpha'$ -azobisisobutyronitrile) et d'un monomère réticulant (Divinylbenzène -DVB-, par ex.), et que l'on chauffe le gel obtenu à 70 °C, un matériau poreux constitué de fibres



**Figure 1.** Schéma global d'obtention de matériaux supramoléculaires innovants obtenus à partir du ligand TSC par auto assemblage supramoléculaire en présence de sels métalliques.

(a) Photographie d'un gel supramoléculaire ; (b) Photographie d'un objet supramoléculaire obtenu après séchage ; (c) et (d) Images MEB d'un objet supramoléculaire séché (barres d'échelle respectives : 20  $\mu\text{m}$  et 0,5  $\mu\text{m}$ ) ; (e) Photographie d'un objet supramoléculaire obtenu après séchage et polymérisation radicalaire en présence du DVB ; (f) et (g) Images MEB d'un objet supramoléculaire "core-shell" (barres d'échelles respectives : 20  $\mu\text{m}$  et 0,5  $\mu\text{m}$ ).

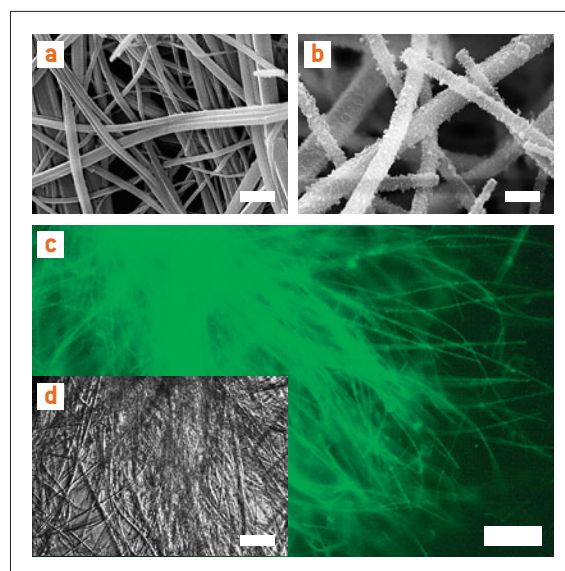
fonctionnalisées recouvertes de polymère est obtenu. Nous observons des points de croissance de polymère au MEB par rapport aux fibres non fonctionnalisées. Ce matériau, une fois séché, manipulable très aisément, possède une masse volumique d'environ 30  $\text{mg} \cdot \text{cm}^{-3}$  (figure 1). L'accès à une nouvelle classe de matériaux supramoléculaires de type « core-shell » ou fibres enrobées a ainsi été démontré.

Sur des fibres à base de TSC et de zinc, nous avons montré, en milieu dilué, qu'il était possible de polymériser un monomère acrylique fluorescent, le méthacrylate de fluorescéine.

La microscopie électronique à balayage confirme que les fibres sont enrobées de polymères et la microscopie de fluorescence ( $\lambda = 490 \text{ nm}$ ) montre que les fibres fluorescent, ceci indiquant clairement que le méthacrylate de fluorescéine a polymérisé à leur surface (figure 2).

## Conclusion

Ces travaux innovants montrent l'accès à une nouvelle classe de matériaux supramoléculaires : il s'agit de fibres supramoléculaires à base de briques éléments de type TSC et d'un métal (tel que *Cu*, *Zn*, *Ni*...) qui peuvent être fonctionnalisées par croissance de polymères à leur surface, notamment par polymérisation radicalaire [5]. Ces fibres supramoléculaires originales constituent de tout nouveaux substrats, simples d'accès pour la préparation d'objet organique 1D pouvant être post-fonctionnalisés de façon versatile afin d'apporter diverses fonctionnalités et, *in fine*, des propriétés intrinsèques optiques, thermiques, mécaniques, magnétiques... Leur fonctionnalisation ouvre de belles perspectives dans le domaine de la catalyse, des matériaux pour les énergies renouvelables, du traitement d'effluents et des biomatériaux en médecine.



**Figure 2.** (a) Image MEB de fibres à base de TSC et de chlorure de zinc (barre d'échelle = 500 nm). (b), (c) et (d) Images des fibres à base de TSC et de zinc après polymérisation du méthacrylate de fluorescéine. (b) Image MEB (barre d'échelle = 500 nm), (c) Image obtenue par microscopie de fluorescence ( $\lambda_{\text{ex}} = 490 \text{ nm}$ , barre d'échelle = 500  $\mu\text{m}$ ), (d) Image obtenue par microscopie optique en lumière naturelle (barre d'échelle = 500  $\mu\text{m}$ ).

## RÉFÉRENCES

- [1] A. BALLAND-LONGEAU, L. MOREAU, J. THIBONNET, E. VELASQUEZ, "Procédé de préparation de matériaux polymériques dopés par des éléments et matériaux obtenus par ce procédé", Brevet CEA n° 07 58126, 8/10/2007.
- [2] L. MOREAU, C. LEVASSORT, B. BLONDEL, C. DE NONANCOURT, J. THIBONNET, A. BALLAND-LONGEAU, "Recent advances in Development of Materials for Laser Target", *Laser and Particle Beams*, DOI:10.1017/S0263034609000317 (2009).
- [3] L.F. LINDOY, I.M. ATKINSON, "Self-Assembly in Supramolecular Systems", Royal Society Chemistry, Cambridge, (2000).
- [4] J.-M. LEHN, "Supramolecular chemistry", VCH Eds, New York, 1995.
- [5] L. MOREAU, A. BALLAND-LONGEAU, P. MAZABRAUD, A. DUCHÊNE, J. THIBONNET, "Supramolecular and core-shell materials from self-assembled fibers", *J. Chem. Commun.*, **46**, DOI:10.1039 (2010).

# MATEO : logiciel intégré pour déterminer les propriétés de matériaux énergétiques par une approche multiéchelles

MATEO est un ensemble de codes permettant de calculer les propriétés de matériaux organiques à partir d'un minimum de données d'entrée. Initialement développé pour les propergols et explosifs, il permet de calculer *a priori* leurs propriétés fondamentales (densité, enthalpies de formation, de sublimation...) ainsi que leurs caractéristiques d'usage (chaleur d'explosion, puissance explosive, impulsion spécifique, température de décomposition, sensibilité à l'impact...). Il se distingue des logiciels décrits dans la littérature par une grande simplicité d'emploi obtenue sans compromis sur la fiabilité, grâce à des modèles développés sur des bases physiques et combinés au sein d'une approche multiéchelles.

**D. Mathieu CEA - Le Ripault**

Dans tous les domaines, la recherche d'une productivité accrue conduit à recourir à des logiciels aux différentes étapes de conception d'un produit. Les études expérimentales sont de plus en plus associées à des techniques *in silico* (i.e. mettant en jeu des moyens informatiques) pour la mise au point de médicaments, par exemple. De même, des modèles numériques seraient particulièrement précieux pour les matériaux énergétiques, étant donné les risques et coûts associés à leur manipulation. Deux types de logiciels sont actuellement disponibles sur le marché pour modéliser des matériaux et relier leurs propriétés à leur composition :

- > les premiers transposent aux matériaux la technique exploitée dans le domaine pharmaceutique, qui consiste à rechercher une relation empirique entre la propriété à évaluer et des grandeurs faciles à calculer pour chaque molécule ;
- > le second type d'outil repose sur des codes permettant de simuler un matériau à l'échelle microscopique sur la base de potentiels interatomiques empiriques.

La première approche est adaptée à l'évaluation de propriétés très complexes inaccessibles à une approche théorique. Son application aux matériaux se heurte à un manque de données expérimentales et au fait que leurs propriétés ne dépendent pas seulement de leur composition chimique mais aussi de paramètres tels que leur morphologie, leur

mise en forme, la présence de défauts... De plus, elle n'exploite pas les connaissances théoriques disponibles.

La seconde est limitée, dans le cas de matériaux organiques, par une méconnaissance de leur structure à l'échelle des molécules, et par le fait que les potentiels classiques ne permettent pas de rendre compte des aspects réactifs malgré des progrès dans ce sens [1].

Pour une modélisation réaliste de ces matériaux, ces outils sont donc insuffisants, et il faut faire appel à différentes disciplines pour aborder les diverses échelles. Moyennant quoi, il est possible d'évaluer les performances théoriques de systèmes basés sur des molécules dont la synthèse n'a pas encore été réalisée. Toutefois, par manque d'outils fiables pour évaluer la faisabilité synthétique des composés envisagés, l'intérêt de ces études théoriques n'est pas nécessairement à la hauteur de l'investissement consenti.

L'expertise des chimistes organiciens étant seule à même de prendre en compte les critères de faisabilité synthétique, l'idéal serait de permettre à ces derniers d'évaluer eux-mêmes les propriétés des matériaux qu'ils se proposent de synthétiser. Des travaux dans cette direction ont été engagés très récemment avec le développement de nouveaux logiciels [2,3]. Cependant, leur facilité d'emploi est obtenue au prix d'une perte de fiabilité, car ils reposent sur des modèles empiriques simples dont les limites sont difficiles à appréhender. Le code



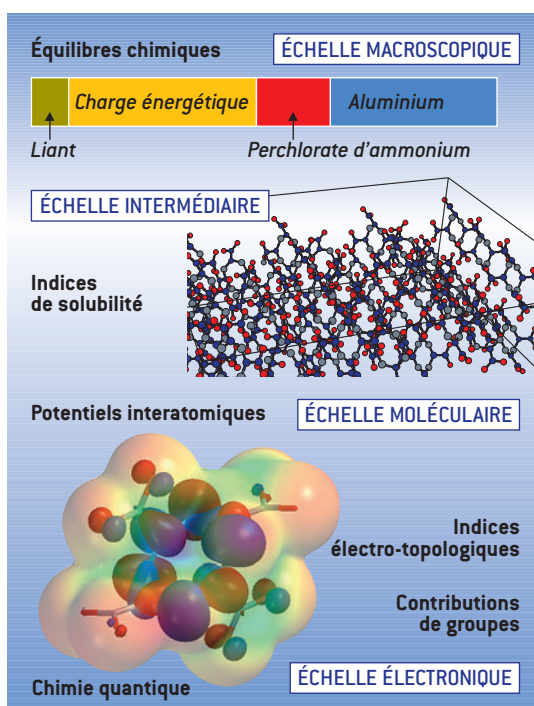
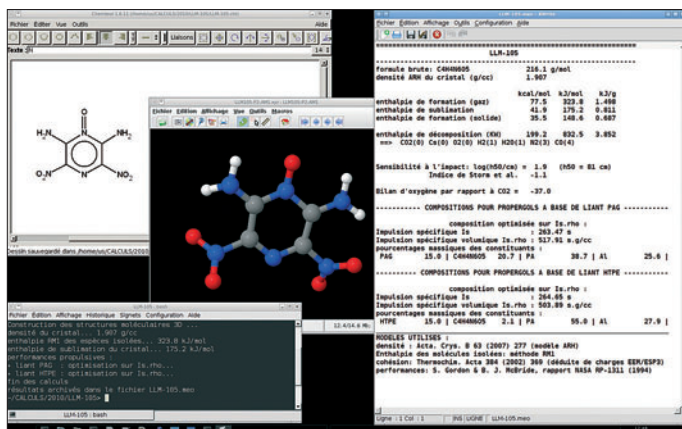
MATEO développé au CEA - Le Ripault [4] combine au contraire fiabilité et simplicité d'utilisation grâce à une approche basée sur les principes suivants :

- > les différentes échelles nécessaires pour décrire le matériau sont considérées de manière explicite (approche dite « multi-échelles ») comme illustré sur la **figure 1** ;
- > les modules de calcul correspondant sont accessibles via une interface unique représentée sur la **figure 2** ;
- > le logiciel : une fois configuré pour effectuer certains types de calcul, son utilisation se limite à spécifier les formules des composés entrant dans la composition du matériau ; les modèles les plus appropriés sont alors automatiquement sélectionnés ;
- > des modèles fiables pour les données de base sont, le cas échéant, remplacés par des modèles moins complexes si la haute précision fournie est perdue lors du calcul des caractéristiques d'usage ;
- > les modèles utilisés sont rappelés dans le fichier de résultats afin d'assurer la traçabilité des calculs.

L'obtention de résultats fiables pour divers types de systèmes (cristaux, polymères, sels...) a nécessité le développement de modèles moins empiriques que ceux habituellement employés [5].

Cet outil a été mis au point en un petit nombre d'années grâce à l'utilisation, chaque fois que cela a été possible, de composants logiciels pré-existants, par exemple pour les calculs d'équilibres chimiques entre produits de combustion ou la détection de l'aromaticité dans les molécules.

**Figure 2.** Interface de MATEO : les formules chimiques saisies dans CHEMTOOL sont converties en structures 3D par BALLOON et affichées par JMOL en même temps que les propriétés calculées. Ces logiciels sont librement disponibles sur internet.



**Figure 1.** Imbrication de différents modèles à diverses échelles pour le calcul de propriétés.

Seuls les modèles propres au laboratoire ont ainsi dû être implémentés, ce qui se traduit par à peine 30 000 lignes de code.

L'usage de ce type d'outil est appelé à se développer, non seulement du fait de besoins dans le domaine des matériaux énergétiques, mais aussi par suite de la réglementation européenne, notamment la directive REACH qui implique en particulier l'évaluation du risque pyrotechnique pour un nombre croissant de composés (environ 143 000 actuellement) et encourage explicitement le développement de méthodes supplantant à l'expérimentation.

## RÉFÉRENCES

- [1] D. MATHIEU, "Split charge equilibration method with correct dissociation limits", *J. Chem. Phys.*, **127**, 224103 (2007).
- [2] H. MUTHURAJAN *et al.*, "Computer code to predict the heat of explosion of high energy materials", *J. Haz. Mater.*, **161**, p. 714-717 (2009).
- [3] M. H. KESHAVARZ *et al.*, "A new computer code to evaluate detonation performance of high explosives and their thermochemical properties. Part I", *J. Haz. Mater.*, **172**, p. 1218-1228 (2009).
- [4] D. MATHIEU, "MATEO : A software package for the molecular design of energetic materials", *J. Hazard. Mater.*, **176**, p. 313-322 (2010).
- [5] D. MATHIEU *et al.*, "Predicting and evaluating performance of energetic salts : models and theoretical tools", *Int. J. Mater. Chem. Propul.*, **8**, p. 19-30 (2009).

# Caractérisation par RMN de composés tricycliques polyazotés

Le CEA Le Ripault a réalisé, en collaboration avec un laboratoire de recherche conventionné de l'Université d'Orléans, l'ICOA, la synthèse d'architectures organiques originales constituées de tricycles accolés, très fortement azotés et substitués. Ces composés sont destinés au développement de matériaux énergétiques. Leur structure chimique a été caractérisée par spectrométrie de Résonance magnétique nucléaire (RMN) à une et deux dimensions, constituant ainsi les premières données RMN de l'azote sur ce type de composés. Des couplages inédits à très longues distances (jusqu'à 7 liaisons) ont été mis en évidence. Ils résultent de la structure chimique très particulière de ces composés, qui permet une forte délocalisation des nuages électroniques. L'adjonction d'un substituant  $NO_2$  dans la structure a pour effet d'augmenter les couplages lointains et les déplacements chimiques des noyaux d'hydrogène, de carbone proches ainsi que tous les atomes d'azote de l'ensemble de la structure.

P. Palmas • C. Nyffenegger • E. Pasquinet CEA - Le Ripault

G. Guillaumet Institut de Chimie Organique et Analytique, Université d'Orléans, UMR CNRS 6005, LRC CEA M09

De nouveaux composés triazapentalènes ont récemment été synthétisés au CEA - Le Ripault [1]. Ces architectures polyazotées, constituées de trois cycles accolés, sont de bons candidats potentiels pour le développement de composés énergétiques insensibles. La présence dans la structure de deux atomes d'azote à la jonction de deux cycles leur confère des propriétés électroniques originales (figure 1). Elles peuvent ainsi être impliquées dans des réactions chimiques particulières telles que les cycloadditions dipolaires [2]. Bien que cette famille de composés ait fait l'objet de nombreux travaux, aucune mesure RMN des déplacements

chimiques du  $^{15}N$  ou des couplages scalaires entre atomes n'avait encore été rapportée sur ces systèmes.

Nous avons récemment obtenu [2], par RMN à une et deux dimensions, ces données pour cinq structures triazapentalènes originales contenant jusqu'à cinq atomes d'azote et différents substituants de type  $CH_3$ ,  $CF_3$  ou  $NO_2$  (figure 1).

## Attribution des signaux

L'attribution des signaux RMN du  $^1H$ , du  $^{13}C$  et du  $^{15}N$  a d'abord été réalisée classiquement par l'examen des déplacements chimiques et des

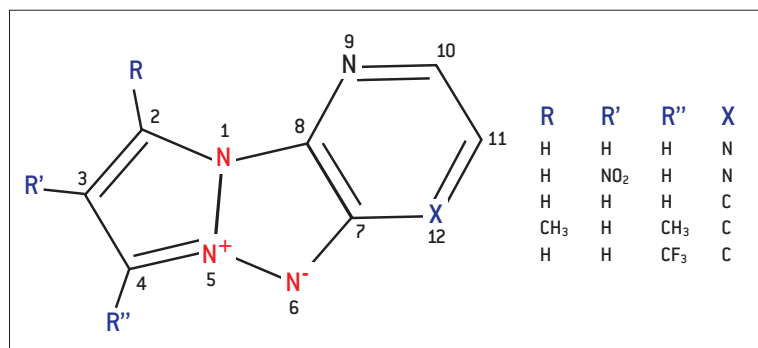
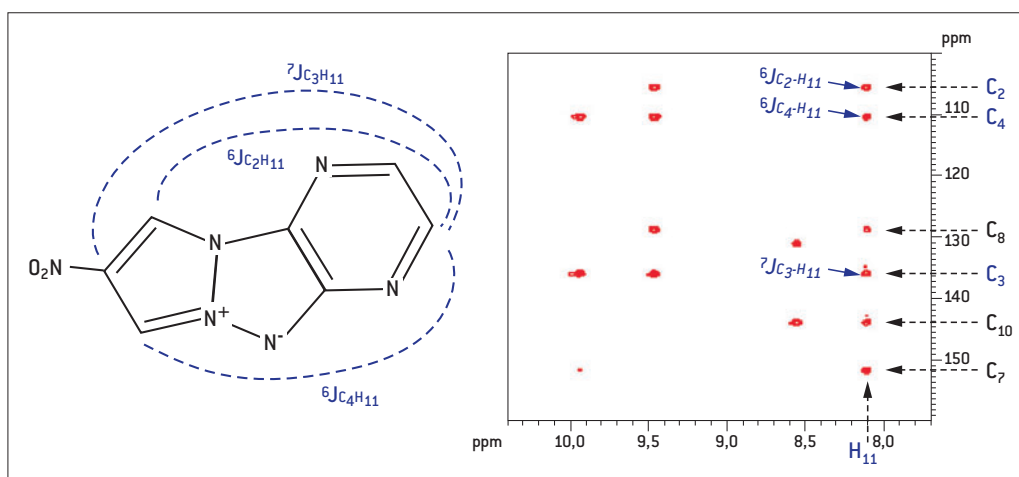


Figure 1. Structure des cinq composés triazapentalène.



**Figure 2.** Corrélations *via* des couplages  ${}^6J$  et  ${}^7J$  (au travers de 6 et 7 liaisons) dans le composé nitré, mesurées sur la carte de corrélation à deux dimensions de l'expérience HSQC et schématisées sur la molécule.

multiplicités observés sur les spectres. Afin d'établir le plus possible de corrélations entre atomes, plusieurs expériences de corrélation à deux dimensions par détection inverse (séquence HSQC pour Heteronuclear Single Quantum Correlation) ont été réalisées en paramétrant la séquence pour trois gammes de couplages : des valeurs les plus fortes entre atomes directement liés ( ${}^1J$ ), aux plus faibles  ${}^nJ$  au travers de plusieurs liaisons. En général, les couplages sont limités à 4 ou 5 liaisons au maximum et les couplages en zigzag sont favorisés lorsque cela est possible car ils mettent en jeu des liaisons  $\sigma$  [3]. Cette procédure a permis de lever certaines ambiguïtés et d'attribuer l'ensemble des carbones et des azotes.

### Effet du substituant $\text{NO}_2$ sur la structure

Le greffage du groupement  $\text{NO}_2$  sur la structure a d'abord été montré indirectement par l'augmentation du déplacement chimique des atomes environnants causée par l'effet fortement électro-attracteur de ce substituant. En revanche, l'observation directe de son atome d'azote étant plus difficile du fait de la très faible sensibilité du  ${}^{15}\text{N}$ , nous avons également utilisé la RMN du  ${}^{14}\text{N}$ , technique plus sensible, mais caractérisée par des raies très larges. La largeur de raie est un inconvénient qui nuit à la résolution spectrale, mais qui, en contrepartie, contient une information sur la structure et la dynamique de la molécule observée. Nous avons pu ainsi estimer le diamètre hydrodynamique de la molécule à une valeur de 6,5 Å, en accord avec la structure attendue.

De façon surprenante, des corrélations lointaines inter-cycles avec des azotes jusqu'à  ${}^5J$  et avec des atomes de carbone jusqu'à  ${}^6J$  et  ${}^7J$  (au travers de 7 liaisons) ont été observées pour le composé nitré (figure 2). De telles corrélations à longue distance sont très inhabituelles. Des couplages  ${}^5J_{\text{CH}}$  et  ${}^6J_{\text{CH}}$  avaient déjà été observés dans des dérivés de la

pyridine comportant un groupement  $\text{C}\equiv\text{N}$  [4]. Dans le cas présent, ils résultent certainement du fort pouvoir électro-attracteur du groupement  $\text{NO}_2$  associé à la délocalisation importante du système  $\pi$  conjugué de la structure tricyclique. Un effet similaire avait été noté sur les couplages  $J_{\text{HH}}$  au travers d'un atome d'azote dans des systèmes aromatiques substitués.

### Conclusion

La structure de cinq nouveaux dérivés triazapentalènes a été déterminée par RMN. Des couplages lointains inédits jusqu'à  ${}^7J$  entre protons et les autres atomes des cycles ont été clairement observés par HSQC. Les mesures ont permis d'évaluer l'influence de différents substituants sur la structure électronique du cycle, en particulier l'augmentation des couplages lointains et du déplacement chimique des atomes par le groupement  $\text{NO}_2$ . Ces mesures constituent les premières données RMN sur l'azote et les couplages dans ce type de molécules. Elles pourront servir de base pour l'étude de systèmes analogues ou plus complexes ou pour des calculs de chimie quantique de la structure électronique.

### RÉFÉRENCES

- [1] C. NYFFENEGGER, E. PASQUINET, F. SUZENET, D. POUILLAIN, G. GUILLAUMET, "Synthèse de molécules tricycliques polyazotées énergétiques", *chocs avancées 2008*, p. 41-42 [2008].
- [2] P. PALMAS, C. NYFFENEGGER, E. PASQUINET, G. GUILLAUMET, " ${}^1\text{H}$ ,  ${}^{13}\text{C}$  and  ${}^{15}\text{N}$  NMR spectral assignments of new triazapentalene derivatives", *Magn. Reson. Chem.*, **47**, p. 752-756 [2009].
- [3] AG. OSBORNE, IR. HERBERT, " ${}^{13}\text{C}$ - ${}^1\text{H}$  coupling-constants-observation of J-4[48] long-range inter-ring zigzag coupling in the quinoline system", *Spectroscopy letters*, **24**(5), p. 733-740 [1991].
- [4] AG. OSBORNE, "Long range cyano  ${}^{13}\text{C}$ - ${}^1\text{H}$  coupling constants in some cyanopyridines and benzonitriles", *Spectrochim. Acta: Part A*, **53**, p 2475-2480 [1997].



# Le radon-222 et les ondes de marée : un outil d'aide à la compréhension de la dynamique des systèmes géologiques

L'analyse fréquentielle de longs enregistrements du radon-222 mesurés dans l'air des sols ou dans l'air confiné des cavités souterraines, peut nous apporter de précieuses informations sur le fonctionnement et les caractéristiques intrinsèques de ces différents milieux. C'est par l'extraction des ondes de marées barométriques, diurnes et semi-diurnes, dissimulées dans les signaux radon-222, que nous pouvons entrevoir l'évolution de phénomènes difficilement observables par d'autres méthodes. C'est une manière indirecte et très sensible d'observation des lois de diffusion, d'advection, d'émanation et de transfert des gaz en milieux poreux, fracturés et saturés en eau de façon variable. Cette méthode, d'une grande sensibilité, nous ouvre la voie vers la détection des ondes de marée gravimétrique, beaucoup plus difficiles à mettre en évidence dans les signaux radon, mais qui permettrait de pouvoir relier une variation d'activité en radon-222 à une sollicitation mécanique connue. En effet, l'onde de marée gravimétrique  $M_2$  est en rapport direct avec l'étude des précurseurs de séismes.

P. Richon • E. Pili CEA - DAM Île-de-France

## La mesure du Radon

Le radon-222 est un gaz radioactif naturel, de période 3,8 jours, issu de la désintégration du radium-226, dans la chaîne de décroissance radioactive de l'uranium-238. Dans l'air, l'eau et les roches, les concentrations naturelles en radon sont en général extrêmement faibles. Exprimée dans une unité fort répandue en chimie de la pollution atmosphérique, une activité volumique habituelle de  $37 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$  ne représente qu'un milliardième de ppb volumique ( $10^9$  ppbV) dans l'atmosphère. Pourtant de telles concentrations en radon restent très faciles à mesurer, tant la désintégration  $\alpha$  constitue un phénomène énergétique : elle rend théoriquement possible la détection d'un atome individuel de radon, performance tout à fait inaccessible aux méthodes d'analyse chimique. C'est cette particularité qui rend le radon si intéressant pour le traçage des phénomènes naturels [1].

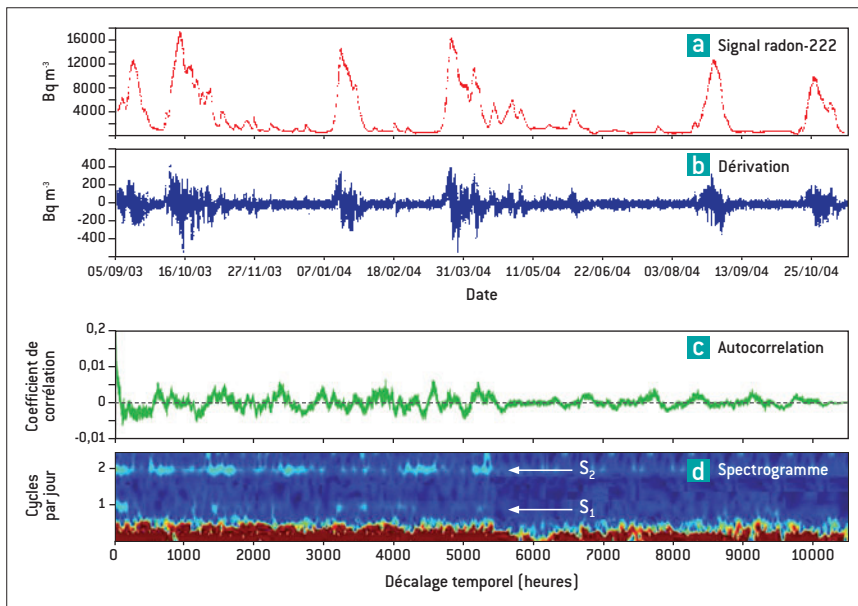
## Applications aux sciences de la Terre

Utilisée depuis le début des années 60 pour la compréhension et la prévision des grands événements géologiques comme les séismes ou les éruptions volcaniques, la mesure du radon-222 n'est pas encore un outil de prévision opérationnel, et ne commencera à le devenir qu'à la condition de savoir déchiffrer et interpréter précisément la moindre de ses variations sur des enregistrements de plusieurs années. Aux variations de grandes amplitudes du signal, souvent associées aux cycles saisonniers et à la météorologie locale, s'ajoute des variations beaucoup plus

petites, mais significatives, noyées dans le « bruit » du signal, et générées par les ondes de marée (barométrique, gravimétrique ou thermique). La présence non systématique de ces ondes et leurs variations temporelles mesurées dans une cavité souterraine ou dans un sol [2], peuvent nous aider à comprendre les différentes sollicitations externes exercées sur les milieux géologiques [3, 4], ou nous donner indirectement des informations sur leurs propriétés physiques : porosité, perméabilité, connectivité à l'atmosphère ou sensibilité aux contraintes tectoniques.

## Extraction des ondes de marées

C'est par des méthodes avancées de traitement du signal [5] que nous procédons à l'extraction de ces ondes de marées et que nous progressons dans la compréhension des interactions qui existent entre les atomes de radon-222 présents dans les pores de la roche et les mécanismes en jeu lors de la préparation des grands événements sismiques ou volcaniques. Cette opération est réalisée à l'aide d'outils statistiques et regroupe l'utilisation de fonctions de dérivation, de transformée de Fourier et de fonctions d'autocorrélations ; le résultat final est présenté sous la forme d'un spectrogramme (figure 1). La difficulté principale est d'identifier, puis d'extraire des ondes de faible amplitude dissimulées dans un signal de forte dynamique. Ce n'est qu'à ce stade que l'analyse temporelle du phénomène est possible. Les applications sont nombreuses ; nous pouvons par exemple étudier l'évolution de la perméabilité à l'air d'un sol par l'extraction de l'onde de marée



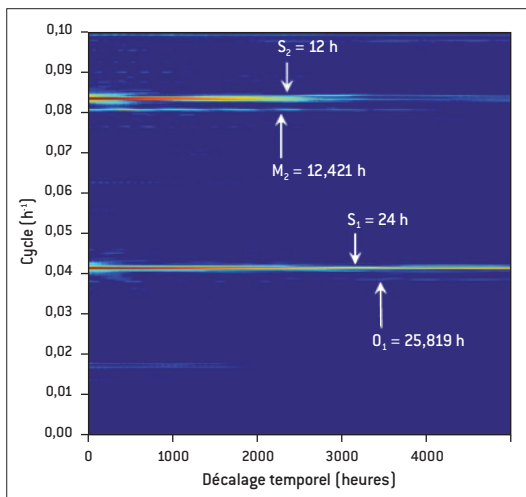
**Figure 1.** Exemple d'analyse fréquentielle appliquée à une série temporelle de radon-222 mesurée dans le laboratoire souterrain de Roselend.  
 (a) Données brutes mesurées ;  
 (b) Application de la fonction dérivée ;  
 (c) Application de l'autocorrélation (une itération) ;  
 (d) Spectrogramme final démontrant la présence des ondes barométriques diurne et semi-diurne  $S_1$  (24 h) et  $S_2$  (12 h) indétectables par l'application d'une simple transformée de Fourier. Aucune onde gravimétrique n'est détectée dans cette série malgré plusieurs autocorrélations successives.

barométrique  $S_2$  (12 h de période). En effet, plus un sol est saturé en eau, plus l'air de ses pores sera « étanche » aux variations de pression atmosphérique. Cette information est contenue dans une longue série temporelle du radon enregistrée dans l'air du sol et peut donc en être extraite par cette méthode. Par cette même approche, il est aussi possible d'étudier la zone endommagée d'un tunnel (EDZ). Le forçage barométrique de l'onde  $S_2$  sur les fractures de l'EDZ et les pores de la roche peut influencer significativement la concentration en radon mesurée dans l'air du tunnel [5]. Le processus de dégazage diffus des volcans peut lui aussi être abordé de la même façon,

le radon suivant particulièrement bien les variations des flux de  $CO_2$  d'origine volcanique, eux-même sensibles au forçage de la pression barométrique.

### Conclusions

Même si la mesure de ce gaz radioactif naturel n'est pas encore un outil opérationnel pour les sismologues et les volcanologues, il n'en demeure pas moins que la maîtrise de cette métrologie bien particulière et du traitement du signal qui lui est obligatoirement associé, peut nous donner un accès indirect à des phénomènes imperceptibles se produisant dans les roches ou les sols. Cette approche statistique sur le bruit du signal radon semble apporter de nombreuses solutions aux problématiques posées en sciences de la Terre (figure 2). L'application aux stockages souterrains, à la séquestration du  $CO_2$  et plus précisément à la migration des gaz en milieu fracturé est un des axes de recherche développé au CEA - DAM depuis plusieurs années au Laboratoire Naturel de Roselend.



**Figure 2.** Spectrogramme final de l'activité en radon mesurée dans une cavité souterraine.  
 Nous distinguons clairement les ondes de pression barométriques  $S_1$  (24 h) et  $S_2$  (12 h) mais aussi les ondes de marée gravimétriques semi-diurne  $M_2$  (12,42 h) et diurne  $O_1$  (25,81 h), ondes très rarement mises en évidence sur des enregistrements radon.

### RÉFÉRENCES

[1] P. RICHON *et al.* "Radon anomaly in the soil of Taal volcano, the Philippines: A likely precursor of the M 7.1 Mindoro earthquake (1994)", *Geophys. Res. Lett.*, doi:1410.1029/2003GL016902, 012003 (2009).  
 [2] F. PERRIER, P. RICHON, J.-C. SABROUX, "Temporal variations of radon concentration in the saturated soil of Alpine grassland: The role of groundwater flow", *Sci. Total Environ.*, 407(7), p. 2361-2371 (2009).  
 [3] M. TRIQUE *et al.* "Radon emanation and electric potential variations associated with transient deformation near reservoir lakes", *Nature*, 399, p. 137-141 (1999).  
 [4] E. PILI, F. PERRIER, P. RICHON, "Dual porosity mechanism for transient groundwater and gas anomalies induced by external forcing", *Earth Planet. Sci. Lett.*, 227(3-4), p. 473-480 (2004).  
 [5] P. RICHON, F. PERRIER, E. PILI, J.-C. SABROUX, "Detectability and significance of 12 hr barometric tide in radon-222 signal, dripwater flow rate, air temperature and carbon dioxide concentration in an underground tunnel", *Geophys. J. Int.*, 176, p. 683-694 (2009).

# Le tritium dans la matière organique des végétaux

La distribution du tritium dans la nature résulte principalement de sa production naturelle par les rayons cosmiques et des conséquences des essais nucléaires des années 1953 à 1964. Cependant, à l'échelle locale, un accroissement des niveaux de concentration du tritium peut être imputé aux activités industrielles du secteur nucléaire. Une partie de l'eau tritiée (HTO) contenue dans les tissus foliaires des végétaux est convertie en tritium organiquement lié (OBT : Organically Bound Tritium), principalement à l'issue du processus de photosynthèse. La concentration en OBT dans les plantes peut être estimée en utilisant le coefficient de transfert d'HTO en OBT, lorsque celui-ci est connu. L'objectif du programme de recherche développé depuis 2004 est d'accéder à une connaissance plus optimale de l'ensemble des facteurs de transfert qui régissent les équilibres entre le tritium dans l'air et la plante.

L. Vichot • Y. Losset CEA - Valduc

## Le tritium dit « organique » et son intérêt pour l'étude des écosystèmes

Pour bien comprendre le véritable intérêt du tritium lié, il convient de définir les différentes formes du tritium présentes dans la matière végétale que sont :

- > le tritium présent sous forme de molécules HTO dans l'eau libre de l'échantillon. Compte tenu des cinétiques d'échanges rapides entre l'air et l'eau de la plante, il est représentatif de la concentration en tritium dans l'environnement au moment du prélèvement ;
- > le tritium organique échangeable, substitué à des atomes d'hydrogène liés à des atomes de la matière organique autres que des atomes de carbone (azote, oxygène, soufre...);
- > le tritium organique non échangeable substitué à des atomes d'hydrogène liés à des atomes de carbone de la matière organique. Le tritium incorporé au squelette hydrogène-carboné de la matière organique demeure

sous cette forme jusqu'à la destruction du végétal. Il constitue alors un formidable marqueur [1].

## Les applications

### Le tritium organique comme marqueur du passé

L'analyse du tritium non échangeable accumulé dans la matière organique des végétaux permet ainsi de reconstituer l'historique des niveaux de tritium dans un environnement donné.

Pour exemple, la **figure 1** présente les résultats de mesures du tritium lié dans les cernes d'un chêne situé à 1 km de la principale source de rejet tritium du Centre CEA de Valduc.

La corrélation entre l'activité OBT dans les cernes d'arbres et les rejets est très marquée. L'augmentation de l'activité du tritium dans les cernes est conjointe à l'augmentation de l'activité tritium de 1969, date du début des activités sur le Centre, et ce, jusqu'en 1975. À partir de

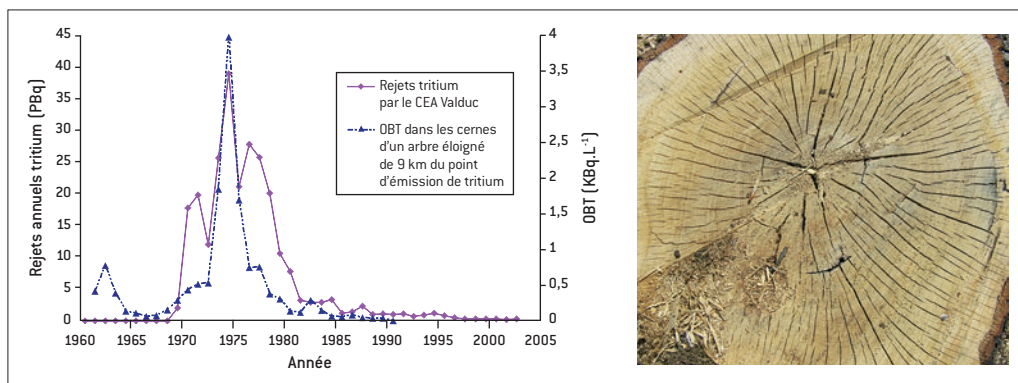


Figure 1. Mesure de l'OBT dans les cernes d'arbres.

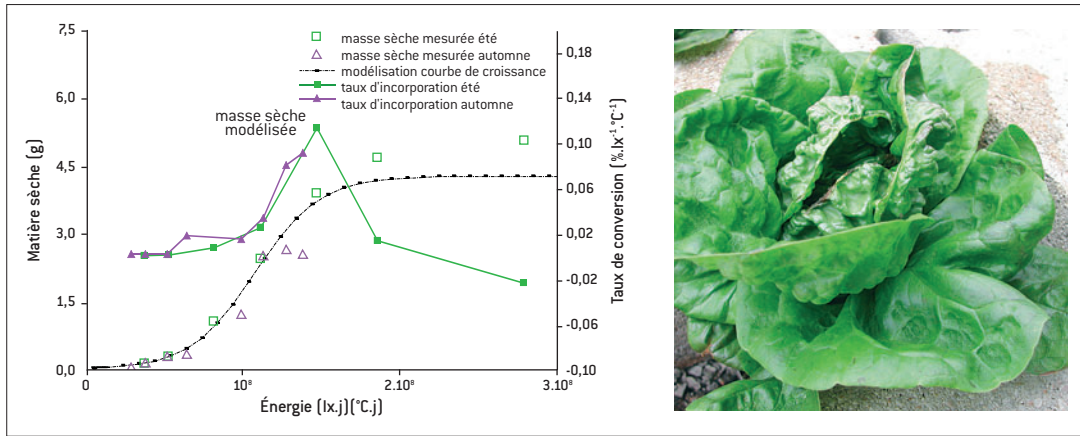


Figure 2. Mesure de l'OBT dans les salades de type feuille de chêne.

1975, la mise en boîte à gants des procédés, l'adjonction successive de plusieurs unités de piégeage du tritium, a conduit à diminuer de manière drastique (facteur 100) les rejets et par conséquent le niveau du tritium lié dans les végétaux avoisinants.

Par ailleurs, la finesse et la pertinence de la technique analytique du tritium lié peuvent être mises en exergue au regard des années antérieures à 1969. En l'absence de toute activité industrielle, l'accroissement du niveau de tritium est très probablement la signature des premiers essais nucléaires menés durant cette période, phénomène déjà relaté par un grand nombre d'auteurs [2].

### Tritium organique et produits agro-alimentaires

Si l'on cherche à déterminer l'impact dosimétrique de la consommation alimentaire d'un produit, alors il faut connaître la valeur des activités de chacune des différentes formes du tritium définies précédemment, et en particulier celle du tritium lié. Habituellement, le modèle de croissance des salades peut être décrit selon (1) :

$$M_t = \frac{K}{1 + \left[ \frac{K - M_0}{M_0} \right] x e^{-rt}} \quad (1)$$

où  $M_0$  est la masse de salade au temps  $t = 0$  (en g),  $M_t$  la masse de salade au temps  $t$  (en g),  $r$  le taux intrinsèque d'accroissement naturel (en g/(g.jour)),  $K$  la masse maximale de la salade (en g), et  $E$  l'équivalent d'énergie fonction de la température et du flux lumineux ( $lx \cdot ^\circ C \cdot j^2$ ).

La figure 2 illustre la courbe de croissance décrite par ce modèle comparativement aux données expérimentales obtenues ainsi que le taux de conversion de HTO en OBT défini selon (2) :

$$\frac{dC_{OBT}}{dE} = v \cdot C_{HTO} \quad (2)$$

où  $C_{OBT}$  est la concentration en OBT dans la plante (en Bq/L d'eau de combustion),  $v$  le taux de conversion de l'eau dans les feuilles en OBT dans les différentes parties

de la plante, ( $\% h^{-1}$  ou encore en  $\% lx^{-1} \cdot ^\circ C^{-1}$ ), et  $C_{HTO}$  la concentration de l'eau libre dans les feuilles (en Bq/L).

La figure 2 montre que l'évolution du taux de conversion est très intimement liée aux périodes de croissance du végétal. Par ailleurs, la connaissance de ce facteur de transfert nous permet d'accéder au coefficient de dose par ingestion. Pour exemple, dans le cas le plus pessimiste (pour les personnes à proximité immédiate et dont la consommation de salade provient à 70% de sa propre culture, considérant une consommation équivalente à 50 g/jour toute l'année), et en prenant la valeur du taux de conversion la plus élevée, ainsi que les coefficients de dose en vigueur ( $4,2 \times 10^{-11} Sv \cdot Bq^{-1}$  pour l'OBT), la dose annuelle est de  $2 \mu Sv/an$ , soit 1 000 fois plus que la dose induite par la radioactivité naturelle en France.

### Conclusion

Nous avons démontré que le tritium lié peut être un formidable marqueur du passé et que la technique permet un niveau de précision équivalent au marquage de l'environnement par les premiers essais nucléaires il y a 50 ans.

Devant l'avènement de nouvelles technologies pour l'énergie comme la fusion thermonucléaire, attendu que le tritium participe au cycle de l'hydrogène dans l'environnement naturel et peut ainsi être présent dans toutes les molécules hydrogénées des plantes et denrées alimentaires qui en dérivent, nos travaux de recherche s'inscrivent dans la parfaite nécessité de maîtriser sa migration et son impact dosimétrique à l'homme. Nos résultats montrent que cet impact reste limité.

### RÉFÉRENCES

- [1] C. BOYER, L. VICHOT, M. FROMM, Y. LOSSET, F. TATIN-FROUX, P. GUÉTAT, P.M. BADOT, "Tritium in plants: a review of the current knowledge", *Environmental and Experimental Botany*, **67**(1), p. 34-51 [2009].
- [2] S. STARK, P.J. STATHAM, R. STANLEY, W.J. JENKINS, "Using tree ring cellulose as a tool to estimate past tritium inputs to the ocean", *Earth and Planetary Science Letters*, **237**, p. 314-353 [2005].

# Calcul haute performance en transfert radiatif

Une nouvelle méthode déterministe pour le transfert radiatif a été développée sur maillage cartésien en 2D. L'intensité radiative grise (moyennée en fréquence) est projetée sur une base d'harmoniques sphériques. Le système hyperbolique résultant est discrétisé par un schéma de Godunov avec flux numérique préservant la limite de diffusion Rosseland. Le coût intrinsèquement élevé du solveur est compensé par une programmation optimisée pour l'exécution massivement parallèle sur supercalculateur hybride (CPU – Central Processing Unit – multicœurs et GPGPU – General-purpose Processing on Graphics Processing Units). Des simulations opérant jusqu'à 3,5 TFlop/s sur 900 cœurs Xeon Core2Quad ont permis de quantifier le nombre d'harmoniques sphériques nécessaires pour atteindre la convergence angulaire sur quelques problèmes modèles et établir des solutions de référence.

V. Arslan • P. Carribault • C. Enaux • H. Jourden • M. Pérache CEA - DAM Île-de-France

## Modèle $P_N$

En transfert radiatif, l'approximation *harmoniques sphériques* consiste à projeter l'intensité radiative  $I$  sur une base tronquée de  $N$  harmoniques sphériques ( $N \geq 1$ ), conduisant à un système hyperbolique appelé *modèle  $P_N$*  [1]. Naturellement précis pour décrire les rayonnements faiblement anisotropes, ce modèle peut restituer les fortes anisotropies pour  $N$  grand. En contrepartie, le nombre d'équations  $E$  du modèle croît avec le carré de  $N$  en 2D (**tableau 1**). Ce coût élevé avait limité les simulations 2D aux valeurs  $N = 1, 2, 3$  jusqu'au début des années 2000. La montée en puissance des moyens de calcul offrant des possibilités nouvelles, quelques équipes cherchent depuis peu à mener des simulations 2D à convergence angulaire [2, 3].

	1D	2D	3D
$N$	$E(N) = N+1$	$E(N) = [(N+1)(N+2)]/2$	$E(N) = (N+1)^2$
1	2	3	4
3	4	10	16
5	6	21	36
9	10	55	100
15	16	136	256
31	32	528	1024
99	100	5050	10000

**Tableau 1.** Nombre  $E$  d'équations du modèle  $P_N$  en fonction du nombre d'harmoniques sphériques  $N$ , en dimension 1, 2 et 3.

## Schéma numérique «Asymptotic-Preserving»

Le modèle  $P_N$  comporte des termes sources qui modélisent les interactions entre matière et rayonnement. Dans les milieux optiquement épais, ces termes sont *raides* et le modèle  $P_N$  tend asymptotiquement vers le modèle de diffusion Rosseland. Fondamental, ce régime de diffusion doit pouvoir être restitué par la méthode numérique : nous parlons alors de schéma *Asymptotic-Preserving* (AP). À la différence des travaux de [2] ou [3], nous avons choisi d'utiliser une méthode de type Godunov pour laquelle nous avons développé un nouveau flux numérique AP [4]. Sans surcoût, cette méthode permet de passer continûment du régime transport au régime diffusion, indépendamment de la finesse du maillage.

Pour illustrer l'apport de notre contribution, nous comparons sur la **figure 1** les résultats numériques fournis par un flux classique (non AP) avec ceux donnés par le flux AP lors de la simulation d'une onde de Marshak ([5], voir J.I. Castor). À coûts de calcul équivalents, les résultats obtenus par le flux AP coïncident avec la solution de référence. Nous vérifions que dans un milieu optiquement épais, le modèle  $P_1$  est suffisant pour restituer le rayonnement faiblement anisotrope.

Dans un milieu transparent, la forte anisotropie du rayonnement nécessite d'employer plusieurs harmoniques sphériques. La **figure 2** montre qu'il faut utiliser au moins quinze harmoniques pour atteindre la convergence du facteur d'Eddington lors de la simulation 1D de l'onde radiative d'Olson, Auer & Hall ([5], voir J.I. Castor). D'autres simulations 2D ont conduit à la même conclusion.



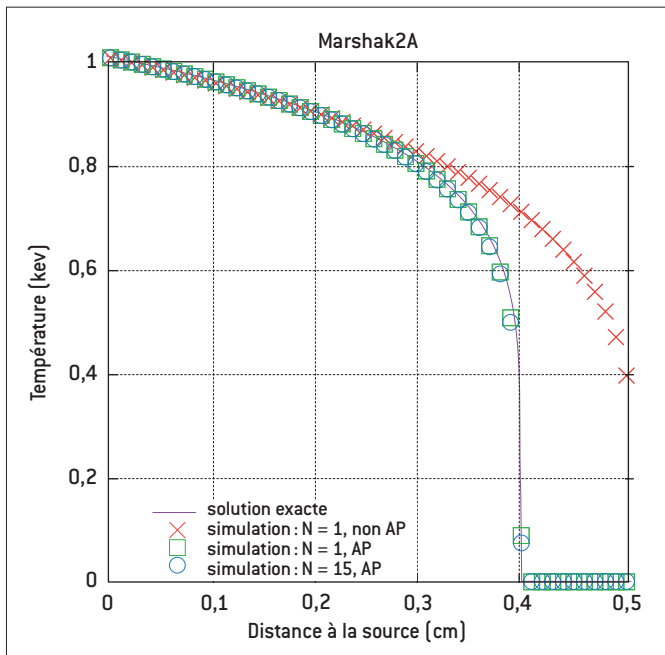


Figure 1. Test Marshak-2A : apport d'un schéma de Godunov Asymptotic-Preserving [AP] pour le transport  $P_N$  en régime diffusion.

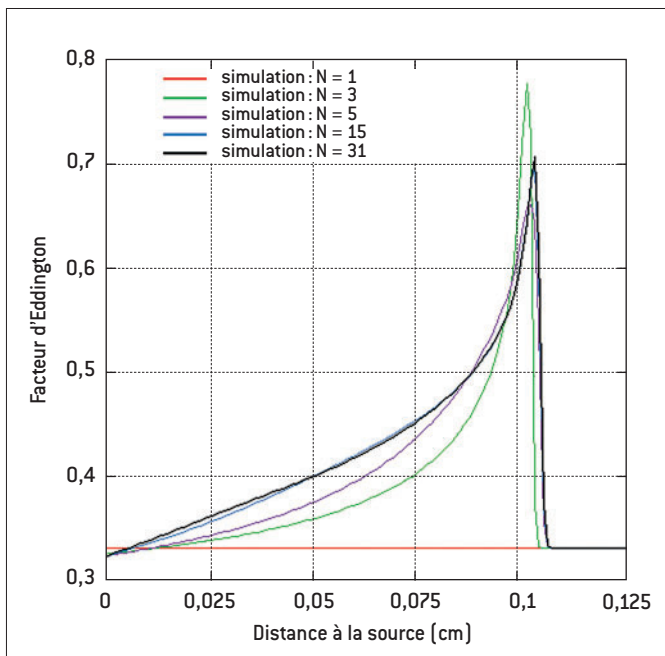


Figure 2. Test Olson-Auer-Hall : convergence angulaire du modèle  $P_N$  en régime transport.

### Calcul Haute Performance

Chaque itération en temps d'une simulation numérique d'un modèle  $P_{15}$  consiste à calculer un flux numérique de  $E = 136$  composantes sur chaque face de chaque cellule du maillage. Compte tenu du schéma utilisé, le calcul d'un flux numérique revient à effectuer deux produits [matrice pleine] x [vecteur] de taille  $E$ . Un tel

solveur, très lourd *a priori*, se prête idéalement à l'optimisation HPC (High Performance Computing) car la plupart des opérations effectuées sont indépendantes, régulières et nécessitent peu d'accès à la mémoire. Un soin particulier a donc été porté à la programmation et l'optimisation du code  $P_N$ .

Concernant les opérations algébriques, les vecteurs ont été regroupés par matrices pour remplacer les produits [matrice pleine] x [vecteur] par des produits [matrice pleine] x [matrice pleine]. Nous avons alors testé deux scénarios d'optimisation des multiplications matricielles :

- > calcul sur CPU avec la bibliothèque Intel MKL (Mathematical Kernel Library) ;
- > calcul sur GPGPU (processeur graphique) avec la bibliothèque Nvidia CuBLAS.

Le calcul sur 4 cœurs Xeon Nehalem s'avère être globalement aussi performant que l'exécution sur 1 GPGPU Tesla, accélérant d'un facteur 10 la version initiale du code. Par ailleurs, nous avons mis en place un parallélisme *mixte*, incluant mémoire distribuée MPI entre les sous-domaines et mémoire partagée OpenMP au sein d'un sous-domaine. Le code  $P_N$  exploite donc pleinement les supercalculateurs de dernière génération, dont les nœuds sont composés de plusieurs cœurs de calcul CPU et GPGPU. En pratique, l'efficacité mesurée dépasse 80 % avec plusieurs centaines de cœurs.

### Résultats et perspectives

Les efforts déployés pour l'optimisation du code  $P_N$  ont permis de mener des simulations complexes de transfert radiatif gris 2D avec les modèles  $P_{13}$ ,  $P_{15}$  et  $P_{17}$  (3.5 Teraflops effectifs sur 900 cœurs Xeon Core2Quad). La comparaison des solutions obtenues montre que le modèle  $P_{15}$  constitue une approximation déterministe raisonnablement convergée de l'opérateur de transport sur plusieurs problèmes modèles. Le code  $P_N$  fournit donc des solutions de référence inédites, utiles par exemple en comparaison avec des solveurs Monte-Carlo.

### RÉFÉRENCES

- [1] G.C. POMRANING, "The equations of radiation hydrodynamics", Pergamon Press (1973).
- [2] R.G. MC CLARREN, T.M. EVANS, R.B. LOWRIE, J.D. DENSMORE, "Semi-implicit time integration for  $P_N$  thermal radiative transfer", *J. Comp. Phys.*, **227**, p. 7561-7586 (2008).
- [3] G.L. OLSON, "Second order time evolution of  $P_N$  equations for radiation transport", *J. Comp. Phys.*, **228**, p. 3072-3083 (2009).
- [4] C. ENAUX, "Analyse mathématique et numérique d'un modèle multifluide multivitesse pour l'interpénétration de fluides miscibles", Thèse de l'École Centrale Paris (2007).
- [5] F. GRAZIANI, "Computational methods in transport: verification and validation", *Lecture Notes in Comp. Sci. and Eng.*, **62**, Springer (2008).

# Méthodes numériques pour l'hydrodynamique lagrangienne appliquées à la simulation de la fusion par confinement inertiel

Le Code d'hydrodynamique et d'implosion du CELIA (CHIC) a été développé depuis 2003 au laboratoire pour dimensionner et restituer des expériences de physique des plasmas créés par laser, dans le domaine de la fusion par confinement inertiel (FCI). Ce code de simulation est la concrétisation d'un travail approfondi qui a permis la mise au point de schémas numériques novateurs, précis et robustes pour l'hydrodynamique Lagrange et la diffusion.

P.-H. Maire • J. Breil • S. Galera • G. Schurtz Centre Lasers Intenses et Applications (CELIA), UMR 5107 Université Bordeaux 1 - CNRS - CEA

## Le code CHIC

L'organigramme de ce code d'hydrodynamique Lagrangien bidimensionnel est présenté en **figure 1**. Dans ce code, l'évolution du plasma est décrite à l'aide d'une modélisation fluide à deux températures (ionique et électronique). Le transport de l'énergie électronique est assuré par le modèle de diffusion de Spitzer-Härm avec limiteur de flux. La propagation des faisceaux laser au sein du plasma sous-dense est calculée par un algorithme de lancer de rayons tri-dimensionnel qui prend en compte la réfraction ainsi que l'absorption collisionnelle. Les champs magnétiques transverses auto-générés sont évalués à l'aide d'un modèle de magnétohydrodynamique (MHD) résistive qui découle d'une loi d'Ohm généralisée. Le couplage avec le

transport d'énergie électronique est effectué *via* le modèle de conduction de Braginskii. Le flux d'énergie radiative est obtenu dans le cadre d'une approximation du type diffusion multi-groupe de l'équation du transfert radiatif. Différents modèles de matière tabulés sont disponibles pour les équations d'états et les opacités. Pour plus de détails sur les modèles physiques le lecteur pourra se reporter à la référence [1].

## Le noyau hydrodynamique

Le module d'hydrodynamique repose sur une description Lagrangienne des équations de la dynamique des gaz. Dans ce formalisme les équations de conservation de la masse, de la quantité de mouvement et de l'énergie totale sont résolues

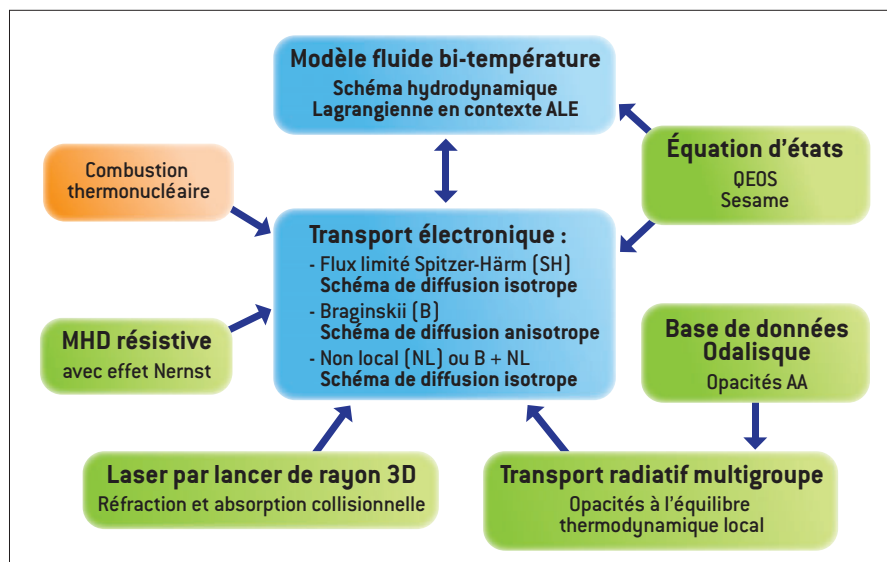
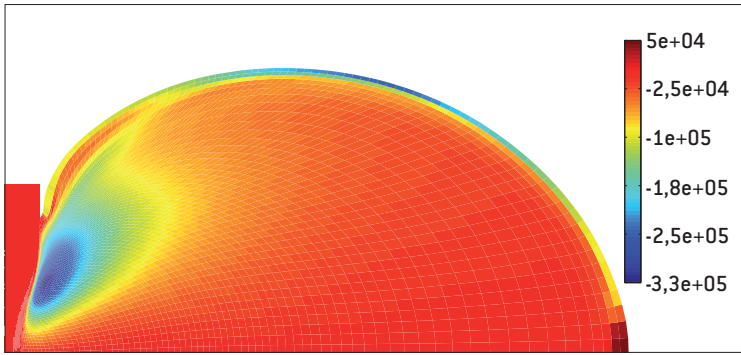


Figure 1. Organigramme du code CHIC avec les principaux modules de physique dédiés.



**Figure 2.** Champ magnétique auto-généré par les gradients croisés de densité et de température. La prise en compte du champ magnétique dans le transport des électrons par le modèle de Braginskii, ajouté à l'effet Righi-Leduc, se fait grâce au schéma de diffusion anisotrope implémenté dans le code CHIC.

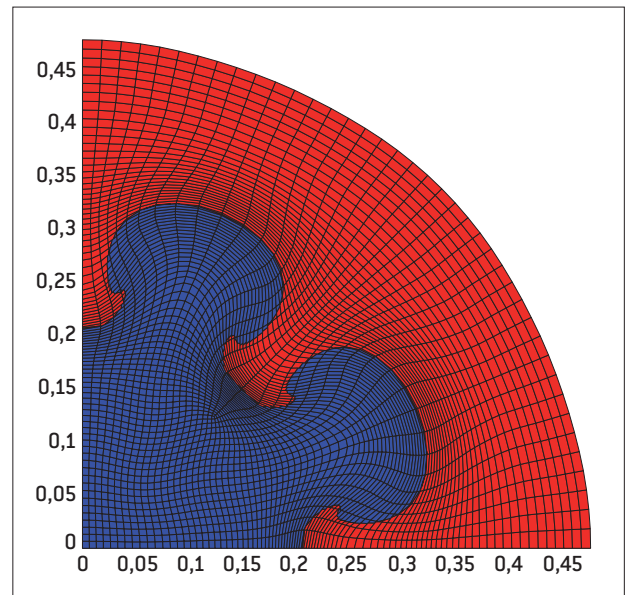
à l'aide d'une méthode du type volume fini sur un maillage mobile qui se déplace à la vitesse du fluide. Nous avons développé un schéma centré aux mailles dans lequel les flux numériques sont calculés de manière compatible avec le déplacement du maillage. Ce schéma numérique est conservatif et vérifie une inégalité entropique qui assure sa cohérence avec le second principe de la thermodynamique. Son extension d'ordre élevé est obtenue en utilisant la résolution du problème de Riemann généralisé [2]. La généralisation à la géométrie axisymétrique est décrite dans [3]. Pour accroître la robustesse du code, nous avons développé une stratégie du type Arbitrary Lagrangian Eulerian (ALE). Cette approche combine une phase Lagrangienne suivie d'une phase de régularisation permettant de restaurer la qualité géométrique du maillage Lagrangien et se termine par une phase d'interpolation conservative des variables physiques de la grille Lagrangienne vers la grille régularisée. La prise en compte des écoulements multi-matériaux s'effectue à l'aide d'une méthode de reconstruction d'interface basé sur un suivi Lagrangien des fractions de volume de chaque matériau.

### Le noyau de diffusion

Les équations d'énergie électronique, ionique, radiative ainsi que l'équation de MHD résistive requièrent la résolution d'une équation de diffusion bidimensionnelle. Les schémas du type volume fini usuels souffrant d'un défaut réhibitoire sur des grilles Lagrangiennes fortement déformées (i.e. les isothermes suivent les lignes de maillage), nous avons développé une discrétisation volume fini robuste et précise pour corriger ce défaut. Cette discrétisation est basée sur une formulation variationnelle locale qui permet de construire une approximation multi-points du flux de chaleur suffisamment précise. Des expériences numériques ont montré que cette méthode est quasiment d'ordre deux pour des maillages non structurés quelconques [4]. L'extension au cas de la diffusion anisotrope pour le modèle de conduction de Braginskii a été développée (figure 2).

### Conclusion

Une validation numérique intensive des différents modules de ce code a été conduite à l'aide de cas tests représentatifs (figure 3). La validation physique de ce code a été acquise par le dimensionnement et l'interprétation de nombreuses expériences de physique des plasmas dans le domaine de la FCI [5].



**Figure 3.** Développement de l'instabilité de Rayleigh-Taylor lors de la compression d'une cible cylindrique. L'utilisation de la reconstruction d'interface et de l'ALE sur maillage non structuré permet de conduire ce calcul jusqu'à son terme.

### RÉFÉRENCES

- [1] R. DAUTRAY, J. WATTEAU, "La fusion thermonucléaire inertielle par laser", Eyrolles (1991).
- [2] P.-H. MAIRE, "A high-order cell-centered Lagrangian scheme for two-dimensional compressible fluid flows on unstructured meshes", *J. Comput. Phys.*, **228**, p. 2391-2425 (2009).
- [3] P.-H. MAIRE, "A high-order cell-centered Lagrangian scheme for compressible fluid flows in two-dimensional cylindrical geometry", *J. Comput. Phys.*, **228**, p. 6882-6915 (2009).
- [4] J. BREIL, P.-H. MAIRE, "A cell-centered diffusion scheme on two-dimensional unstructured meshes", *J. Comput. Phys.*, **224**, p. 785-823 (2007).
- [5] S. ATZENI *et al.*, "Studies on targets for inertial fusion ignition demonstration at the HiPER facility", *Nuclear Fusion*, **49**(5), 055008 (2009).

# Visualisation multirésolution de résultats de simulations

En raison de la complexité et de la quantité croissante des données issues des chaînes de simulation du CEA - DAM, les techniques traditionnelles de visualisation scientifique sont mises en défaut. Dans ce contexte, une approche par hiérarchisation des données est proposée afin de construire une représentation multirésolution permettant la visualisation interactive et un transfert progressif d'une grande quantité de données.

F. Vivodtzev CEA - CESTA

Les efforts de recherche en modélisation et en simulation ont nécessité la création de modèles multiphysiques complexes définis sur des maillages toujours plus fins. Dans certains domaines comme en électromagnétisme, ces données sont caractérisées par des couches minces de matériaux et de nombreuses sous-structures comme des antennes ou des fils.

La simplification volumique par contraction itérative d'arêtes du maillage est une technique permettant d'alléger la visualisation. La difficulté de cette technique réside dans le maintien de l'intégrité des modèles lors de la simplification qui doit préserver (i) la géométrie et la topologie du domaine 3D (ii) les données issues de la simulation ainsi que (iii) la géométrie et la topologie des sous-structures imbriquées.

Basé sur des résultats en topologie algébrique, un algorithme robuste est proposé dans le but de déterminer si une arête d'un maillage tétraédrique peut être contractée sans changer ni la topologie du maillage ni celle de toutes ses sous-structures imbriquées.

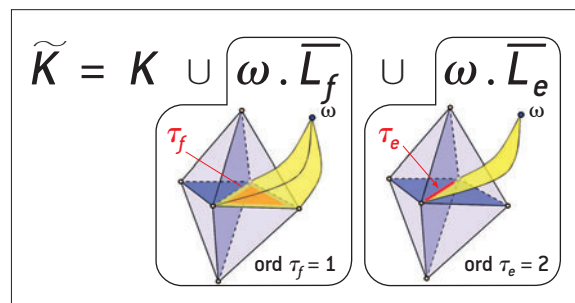
## Notions de topologie algébrique

Les notions de topologie utilisées dans ces travaux sont introduites dans [1], illustrée dans [2]. Le domaine sous-jacent au maillage est représenté par un espace topologique et sa discrétisation par un complexe simplicial. Ce dernier est un ensemble particulier de cellules (sommets, segments, triangles, tétraèdres) appelées simplexes. Les complexes simpliciaux peuvent être comparés à l'aide d'applications simpliciales construites à partir d'une association de sommets. Pour assurer que deux complexes simpliciaux sont homéomorphes et ont la même topologie, nous cherchons des subdivisions isomorphes de ces complexes. La preuve est

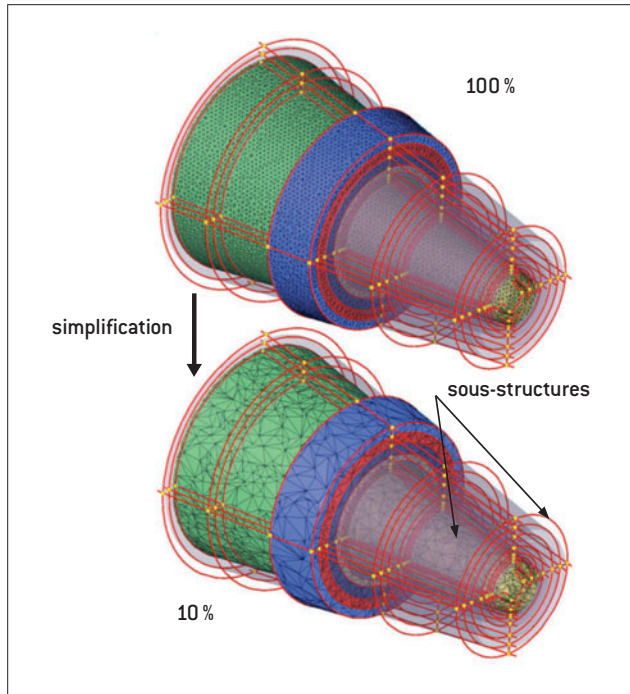
réalisée par vérification de certaines conditions au voisinage des arêtes à contracter en utilisant au niveau des simplexes les notions de faces, co-faces, étoilés, liens, ordres, frontières...

Un théorème de préservation de la topologie utilisant des conditions du lien et démontré dans [3] garantit que deux complexes simpliciaux, avant et après contraction, ont la même topologie sous certaines conditions. Bien que largement utilisées dans d'autres méthodes [4], ces conditions ne tiennent pas compte d'éventuels sous-complexes imbriqués.

Afin de prendre en compte correctement les sous-structures, l'algorithme propose d'étendre le complexe simplicial d'origine par un cône de simplexes entre un sommet fictif et l'ensemble des sous-structures surfaciques et linéiques, comme illustré sur la **figure 1**. De ce fait, les sous-structures, dans le *complexe étendu*, seront représentées implicitement par des simplexes d'un ordre plus élevé. Avec cette construction modifiant le complexe initial, le théorème de préservation de la topologie [3] s'applique à condition de l'évaluer dans une série de complexes de dimensions décroissantes [5].



**Figure 1.** Construction du complexe étendu : les simplexes en rouge correspondent aux sous-structures imbriquées et en jaune ceux du complexe étendu.

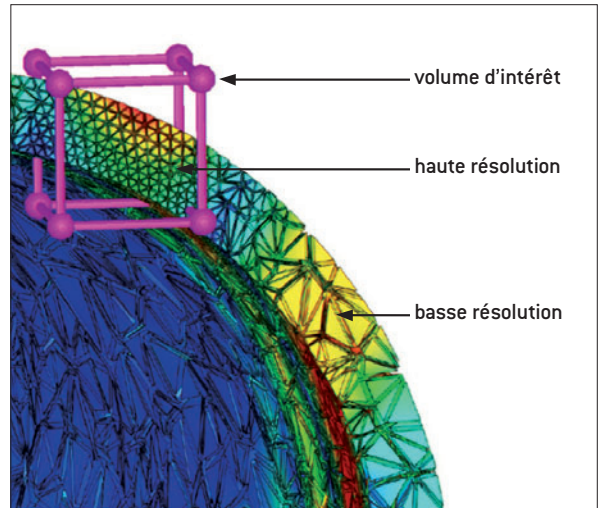


**Figure 2.** Simplification de 90 % des sommets avec préservation de la topologie d'un modèle composé de multiples sous-structures linéiques et d'interfaces.

### Applications en visualisation multirésolution

La **figure 2** illustre la simplification d'un maillage pour une simulation en électromagnétisme. L'objet est composé d'une vingtaine de fines couches de matériaux encapsulées les unes dans les autres et possédant des structures filaires. Après suppression de 90 % des sommets avec la méthode proposée, la topologie des interfaces, des structures linéiques et de leurs multiples intersections est conservée.

Afin de fournir un système de visualisation interactif possédant tous les avantages du critère de préservation de la topologie, l'algorithme a été couplé à une librairie multirésolution. Cette librairie appelée MT (*Multi-Tesselation*) fournit les outils nécessaires pour construire une représentation multirésolution depuis une séquence de simplifications valides. L'outil ainsi développé permet à un utilisateur de naviguer dans un maillage volumique à basse résolution tout en le raffinant localement dans un certain volume d'intérêt (**figure 3**).



**Figure 3.** Visualisation multirésolution d'un résultat d'une simulation en électromagnétisme sur une fine couche de matériau.

### Conclusion

L'exploitation de grands résultats de calcul nécessite des techniques de visualisation avancées comme la multirésolution avec préservation de la topologie présentée dans ces travaux. La complexité des données multiphysiques et des maillages manipulés impose des techniques robustes garantissant la pertinence des visualisations.

### RÉFÉRENCES

- [1] J. MUNKRES, "Elements of algebraic topology", Perseus publishing, Cambridge (1984).
- [2] F. VIVODTZEV, G.-P. BONNEAU, P. LE TEXIER, "Topology Preserving Simplification of 2D Non-Manifold Meshes with Embedded Structures", *The Visual Computer*, **21(8)**, Springer-Verlag, Heidelberg (2005).
- [3] T. DEY, H. EDELSBRUNNER, S. GUHA, D. NEKHAYEV, "Topology preserving edge contraction", *Publications de l'Institut de Mathématiques*, Beograd, **66(80)**, p. 23-45 (1999).
- [4] P. CIGNONI, D. COSTANZA, C. MONTANI, C. ROCCHINI, R. SCOPIGNO, "Simplification of tetrahedral volume with accurate error evaluation", *Proceedings IEEE Visualization '00*, p. 85-92, (2000).
- [5] F. VIVODTZEV, G.-P. BONNEAU, S. HAHMANN, H. HAGEN, "Substructure Topology Preserving Simplification of Tetrahedral Meshes", *Topology in Visualization*, Springer Mathematics and Visualization, Heidelberg (2009).

# Vers une nouvelle génération d'oscilloscopes temps réel

La faisabilité d'un concept d'échantillonnage original est démontrée à partir d'un principe de stroboscopie, sur fibres optiques monomodes, en vue de la réalisation d'oscilloscopes *temps réel* de nouvelle génération dans le domaine gigahertz - térahertz. Nous validons par l'expérience la possibilité d'acquérir la forme d'une impulsion dans une bande passante de mesure de 100 GHz.

A. Jolly • J.-F. Gleyze CEA - CESTA

## Le concept d'échantillonnage

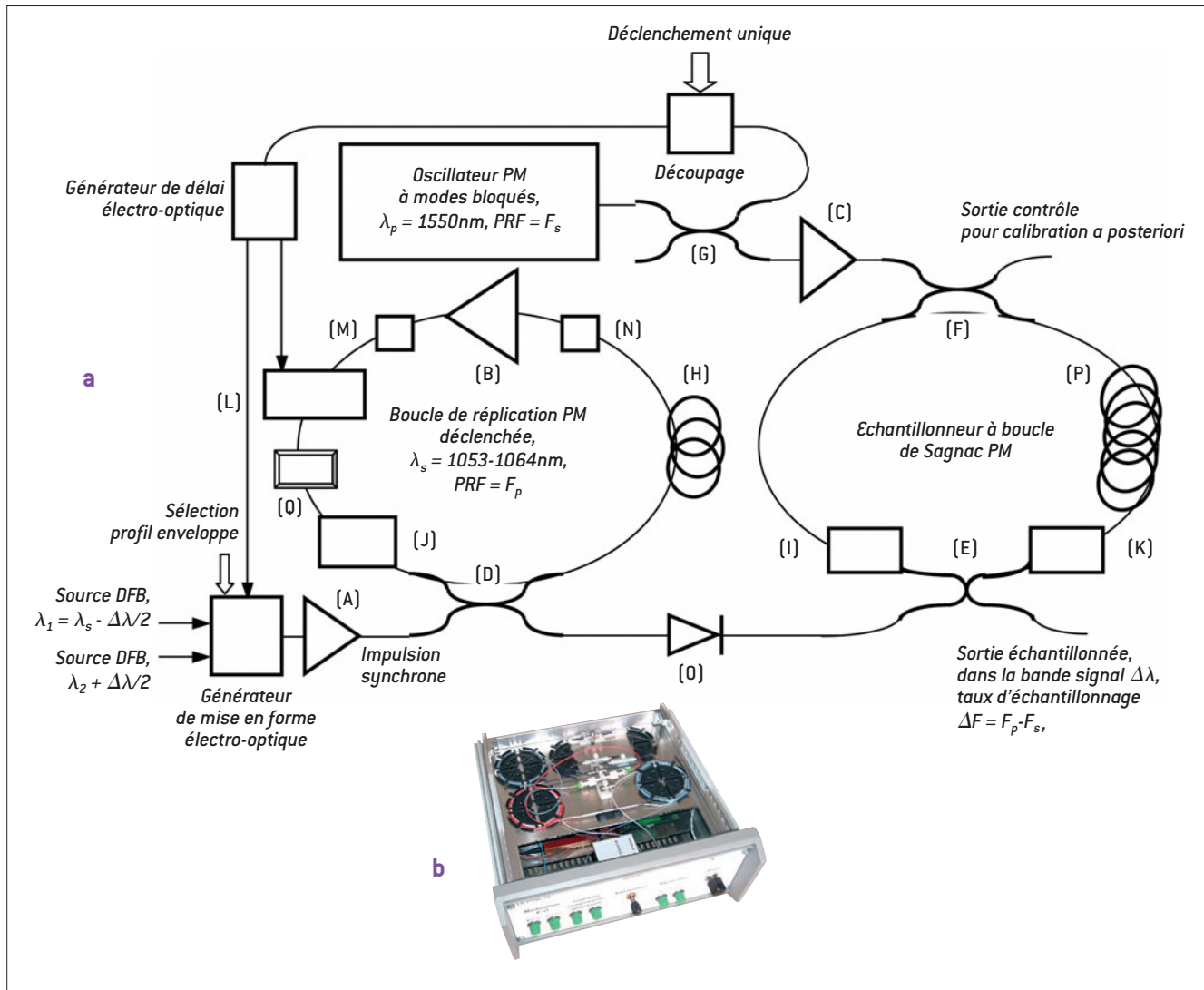
Un nouveau concept d'échantillonnage *tout optique* [1], dédié à la réalisation d'oscilloscopes *temps réel* de nouvelle génération, a été proposé dans l'objectif de performances de mesure inaccessibles par voie électronique : une bande passante de mesure pouvant atteindre 300 gigahertz (GHz) et une dynamique d'échantillonnage de 30 dB, soit ~10 bits de codage. Par rapport aux oscilloscopes électroniques actuels les plus rapides, limités entre 10 et 30 GHz, il s'agit d'une avancée considérable. L'idée de base consiste à mettre en œuvre, sur fibres monomodes, un procédé de stroboscopie temporelle incluant :

- > une fonction de réplification dans une boucle quasi résonante, fournissant un grand nombre de répliques issues de l'impulsion à analyser ;
- > une fonction d'échantillonnage de très haut contraste, sur les répliques, à la cadence définie par une horloge laser asynchrone.

La fonction d'échantillonnage permet de quantifier la valeur instantanée du signal. Elle est déclenchée par une horloge continue, de telle sorte que les points échantillonnés soient décalés d'un intervalle de temps donné entre deux répliques successives. Ce principe de balayage temporel, analogue à celui d'un stroboscope, est connu en électronique. Mais son application à une impulsion unique, répliquée dans le domaine optique, est nouvelle. Un mode de réalisation est présenté sur la **figure 1**, dans une architecture totalement fibrée. La fonction de réplification est intégrée dans une boucle unidirectionnelle incluant un amplificateur à terre rare [2], ou paramétrique [3], refermée sur un coupleur en X. Une réplique est générée à chaque tour (**figure 1a**, gauche). L'amplificateur permet de caler le gain de boucle près de l'unité,

pour y faire tourner l'impulsion incidente aussi longtemps que nécessaire, en préservant un rapport signal sur bruit satisfaisant. L'enveloppe du train de répliques est inscrite dans un gabarit borné. Malgré un chemin optique dispersif et plus ou moins long, typiquement plusieurs kilomètres, une bande passante de mesure excessivement large peut être préservée. Typiquement 100 GHz dans l'architecture optique de base, celle présentée ici, et potentiellement 300 GHz à 1 THz dans une configuration optimisée. L'horloge est une source à modes bloqués de durée d'impulsion sub-picoseconde (ps). Elle déclenche l'échantillonneur. Ce dernier, équivalent à un générateur de porte ultra rapide, est ici réalisé à l'aide d'une boucle de *Sagnac* de structure interférométrique [4]. Le principe consiste à exploiter l'effet *Kerr* dans la silice, en régime de propagation à haute intensité laser (**figure 1a**, droite). Les valeurs de résolution temporelle et de contraste obtenues varient de 0,3 à 3 ps et de 25 à 40 dB, respectivement. L'ensemble *boucle de réplification + échantillonneur* constitue le cœur optique de l'oscilloscope. Le profil de l'impulsion incidente est restitué *a posteriori*, après conversion sous forme électrique, pondération à l'aide d'un coefficient correctif fixé par la forme de l'enveloppe du train de répliques puis repositionnement au pas temporel défini par le taux d'échantillonnage effectif.

Les différentes solutions envisageables pour la réalisation des deux fonctions optiques de base ont été étudiées dans le cadre d'un projet de R&D pluri-annuel, cofinancé par le CEA-DAM et le Conseil Régional d'Aquitaine sur la période 2006 - 2009. Un *consortium* a ainsi été constitué sur la base de collaborations *intra* DAM et CEA - Université, avec



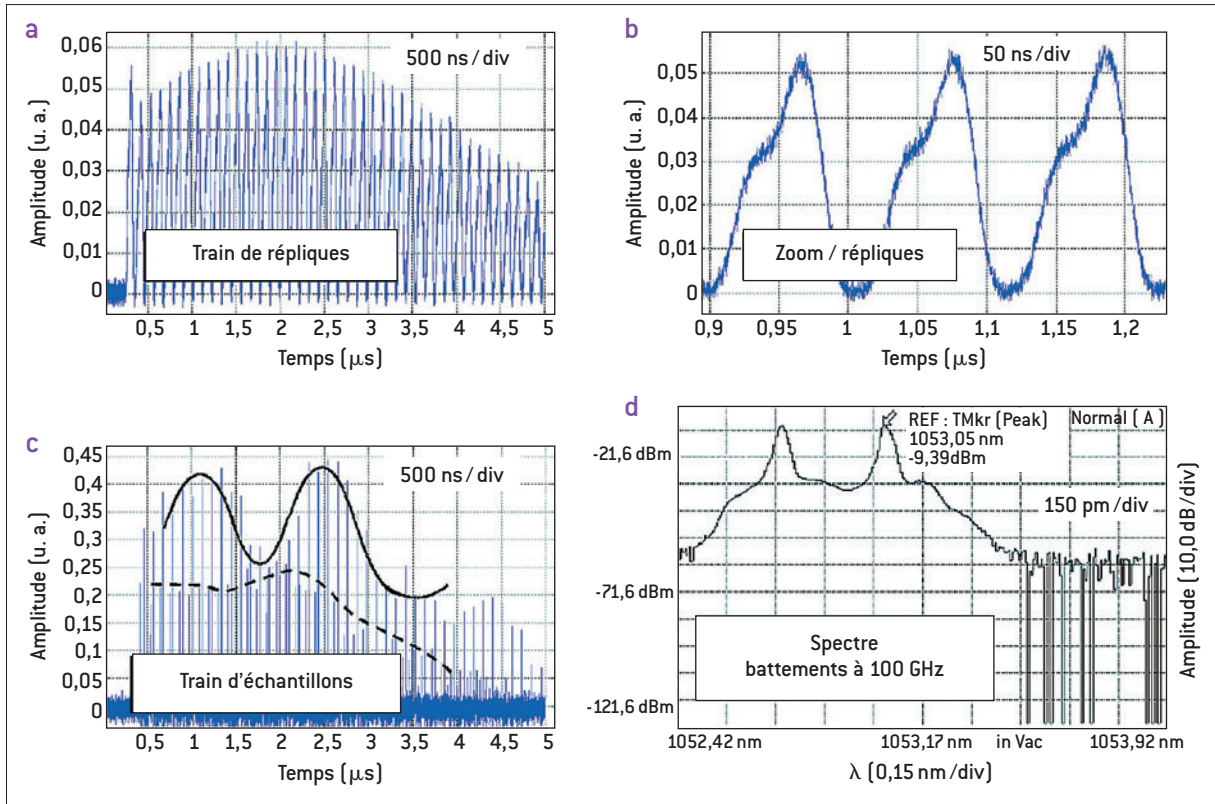
**Figure 1.** [a] Configuration fibrée synchronisée sur une boucle de Sagnac, avec les composants suivants  
 {[A], [B]} = amplificateur sur fibre dopée à Ytterbium (YDFA) et à maintien de polarisation (PM),  
 [C] = amplificateur Erbium PM, {[D], [E], [F], [G]} = coupleurs 50-50% PM, [H] = bretelle PM pour le calage de la synchronisation,  
 {[I], [J], [K]} = contrôleurs de polarisation, [L] = modulateur acousto-optique, {[M], [N]} = filtres spectraux, [O] = isolateur optique,  
 [P] = fibre non linéaire courte, [Q] = ligne à retard fibrée PM de longueur ajustable par pas sub-millimétrique.  
 [b] Photographie du dispositif.

les instituts XLIM à Limoges, FEMTO à Besançon, et le laboratoire PHLAM à Lille.

### Validation d'une bande passante de 100 GHz sur impulsion à battement de fréquences

La première démonstration expérimentale [5] est conduite à 1 053 nm, longueur d'onde fondamentale pour la LIL et le LMJ. Le taux d'échantillonnage, défini par l'inverse de l'écart de période entre la réplication et l'horloge, est ajusté entre 1 et 10 THz. Côté réplication, le phénomène d'accumulation progressive de bruit sur le signal constitue la limite de performances essentielle : sur 1 000 répliques,

la dégradation de la dynamique sur le signal varie de 2 à 4 bits. Côté échantillonnage, l'optimisation des performances est basée sur la maîtrise des mécanismes de modulation de phase croisée et d'auto-modulation de phase sur le tronçon de fibre non linéaire utilisé dans la boucle de Sagnac. L'horloge étant maître, le schéma retenu tient compte des contraintes de synchronisation et de caractérisation. L'impulsion *signal* à analyser est formée à l'intérieur d'une enveloppe composite dont la zone avant, monomode, est lentement variable. La zone arrière présente des modulations intenses, produites par le battement de deux raies laser décalées. Le contrôle de l'écart spectral qui



**Figure 2.** Validation du concept d'échantillonnage : (a), (b) et (c) chronogrammes enregistrés en configuration d'échantillonnage en temps réel et (d) spectrogramme sur une impulsion de signal modulée par battement de deux fréquences autour de 1 053 nm, avec une fréquence de modulation égale à 100 GHz.

fixe la période de battement permet de fabriquer un signal « de référence », parfaitement connu. Notre configuration expérimentale permet d'acquérir deux points par réplique, zone par zone. La présence des modulations est mise en évidence par comparaison directe des deux séries couplées (figure 2). Ceci permet de matérialiser le processus stroboscopique de manière simple et visuelle, dans une gamme de temps hors de portée des instruments disponibles sur le marché. Nous avons ainsi constitué le cœur d'un oscilloscope *temps réel* de bande passante 100 GHz et de dynamique supérieure à 25 dB. La limite de bande passante ultime est conditionnée par les effets de dispersion spectrale pendant la réplique. Les solutions pour étendre la bande passante à 300 GHz et plus sont basées sur l'adjonction de fibres micro-structurées et de filtres de *Lyot* accordables, selon le principe générique d'une égalisation fine du gain spectral de la boucle. Les points critiques majeurs dans ce qui devrait déboucher à terme sur une nouvelle

technologie d'oscilloscope *tout optique - temps réel* étant clairement identifiés, de nouveaux champs d'application sont aujourd'hui ouverts en matière de métrologie d'impulsions. Ils restent maintenant à explorer.

RÉFÉRENCES

[1] Brevet CEA PCT/FR2005/050437 [2004].  
 [2] A. JOLLY *et al.*, "Static and Synchronised Switching Noise Management of Replicated Optical Pulse Trains", *Optics Com.*, **264**, p. 89-96 (2006).  
 [3] Th. SYLVESTRE *et al.*, "Parametric amplification and wavelength conversion in the 1040-1090 nm band by use of a photonic crystal fiber", *Appl. Phys. Lett.*, **94**, 111104 (2009).  
 [4] A. JOLLY, C. GRANIER, "All - Optical Sampling with Sagnac Switches Using Closed Pump and Signal Wavelengths near 1  $\mu$ m", *Optics Com.*, **281**, p. 3861-3871 (2008).  
 [5] A. JOLLY *et al.*, "Demonstration of a true single-shot 100 GHz-bandwidth optical oscilloscope at 1053-1064 nm", *Opt. Express*, **17**(14), p. 12109-12120 (2009).



# Prix et distinctions

## Prix du meilleur article

→ **Karine Wittman-Teneze** et **Nadège Caron** (CEA - Le Ripault) ont obtenu le **prix du meilleur article du Journal of Thermal Spray Technology** pour leur article « Parameters Controlling Liquid Plasma Spraying : Solutions, Sols, or Suspensions ».

Cet article a été rédigé par le Laboratoire de projection thermique du CEA - Le Ripault dans le cadre du laboratoire de recherche commun créé avec l'équipe SPCTS de l'université de Limoges. Cette revue internationale est la plus complète et la plus lue dans le monde de la projection thermique. Ce prix, remis aux États-Unis lors du congrès international de projection thermique 2009 réunissant près de 1 000 chercheurs, traduit l'intérêt croissant des recherches menées pour l'exploitation de ce procédé.

## Prix du meilleur poster

→ **Céline Lucchesi** (CEA - Le Ripault) a reçu le prix du meilleur poster à l'European Polymer Congress 2009 qui s'est déroulé du 12 au 17 juillet en Autriche. Le poster présentait une nouvelle classe de matériaux supramoléculaires de structure Core-shell. Ces fibres recouvertes de polymère, obtenues par auto-assemblage supramoléculaire d'un ligand en présence de sels métalliques, sont des candidats potentiels pour la fabrication d'éléments millimétriques de cibles laser. Décerné par la Royal Society of Chemistry, ce prix récompense les travaux menés au Département des matériaux du CEA - Le Ripault en collaboration avec l'Université de Tours dans le cadre du projet cibles-laser.

→ Prix du meilleur poster pour les travaux, réalisés dans le cadre de la collaboration CEA/DAM - NNSA en Computer science, présentés conjointement par le **Département sciences de la simulation et de l'information (DSSI)** du CEA - DAM Île-de-France et le Sandia National Laboratory (USA) à la conférence annuelle **International Meshing Roundtable**, rendez-vous des experts en algorithmes et applications informatiques dédiés aux maillages.

## Photon de l'Innovation 2009

→ Les bancs de mesure de vélocimétrie hétérodyne, développés par le **Département Conception et Réalisation des Expérimentations (DCRE)** du CEA - DAM Île-de-France et commercialisés sous licence par la société IDIL, ont été récompensés par le Photon d'argent décerné par la **revue Photoniques** et la communauté photonique française. Ces bancs sont un moyen industriel novateur de mesure optique de vitesses que le département met notamment en œuvre sur des tirs froids.

## Prix de l'innovation

L'Université de Limoges, en association avec le Conseil régional du Limousin et OSEO, organise chaque année le Concours Jean-Claude Cassaing, qui récompense les travaux scientifiques des docteurs de l'Université de Limoges. **Anne-Cécile Bravo**, qui a soutenu en décembre 2008 sa thèse sur l'élaboration de céramiques transparentes de  $\text{Yb:Sc}_2\text{O}_3$  (travaux effectués au Département des matériaux du CEA - Le Ripault) a reçu le Prix de l'innovation, qui prime l'originalité des travaux de thèse selon plusieurs critères : innovation, nouvelles applications techniques, nouveaux champs de recherche, création d'entreprise.

## Distinctions

- **Thierry Massard**, directeur scientifique de la DAM, a reçu en juillet le titre de **World Fellow of the International Committee on Composite Materials**. Il est le premier Français à recevoir cette distinction qui récompense des contributions exceptionnelles dans le domaine des matériaux composites.
- **La Médaille Charles Eichner 2009** a été décernée à **Patrick David** (CEA - Le Ripault) en reconnaissance « des mérites d'une personnalité dont les travaux ont eu des conséquences importantes dans le domaine des matériaux utilisés pour la production d'énergie ou dans le domaine des matériaux émergents ».
- **La Médaille Jean Rist 2009** a été décernée à **Nadège Caron** (CEA - Le Ripault) au titre d'encouragement des jeunes spécialistes de la science des matériaux qui se sont distingués par leurs travaux tant scientifiques qu'appliqués sur les matériaux.
- **Jean Aupiais** (CEA - DAM Île-de-France) a été élu membre de la Section 13 (Physicochimie : molécules, milieux) du Comité national de la recherche scientifique pour son expertise en radiochimie. Les sections de ce comité ont pour mission d'évaluer l'activité des chercheurs et des unités de recherche du Centre national de la recherche scientifique (CNRS). Elles participent également au recrutement des chercheurs et aux analyses prospectives des unités dans le cadre de la stratégie du CNRS.
- **Philippe Belleville** (CEA - Le Ripault) a été élu Secrétaire du Board of Directors de l'International Sol-Gel Society (ISGS) lors de la 15<sup>ème</sup> Conférence internationale sol-gel.
- **Christian Deleuze** (CEA - Le Ripault) a été élu membre du Bureau et du Conseil national de la Société française de métallurgie et des matériaux (SF2M).



## SOUTENANCES HDR EN 2009

*Habilitations à Diriger des Recherches*

### Philippe Belleville

**CEA - Le Ripault**  
Synthèse colloïdale et dépôts granulaires : une chimie particulière ou l'importance de la chimie applicative

### Hervé Bercégo

**CEA - CESTA**  
Endommagement laser nanoseconde en surface de la silice vitreuse

### Christophe Blancard

**CEA - DAM Île-de-France**  
Contribution à la modélisation de l'opacité spectrale de plasmas d'ions multichargés à l'équilibre thermodynamique local

### Stéphane Bernard

**CEA - DAM Île-de-France**  
Contribution à la simulation à l'échelle atomique de la matière condensée, avec des apports spécifiques du couplage multiéchelles pour les calculs des propriétés des métaux en conditions extrêmes

### Alain Jolly

**CEA - CESTA**  
Architectures à composants électro-optiques et milieux solides pompés par diodes, pour la génération d'impulsions laser et l'échantillonnage optique

### Sébastien Lambert

**CEA - Le Ripault**  
Apports de l'expertise dans le développement de matériaux fonctionnels

### Vincent Meot

**CEA - DAM Île-de-France**  
Excitation nucléaire dans les plasmas

### Denis Penninckx

**CEA - CESTA**  
La polarisation dans les fibres optiques et autres travaux relatifs aux télécommunications optiques et au laser Mégajoule

### Isabelle Tovena

**CEA - CESTA**  
Études des contaminants particuliers et moléculaires dans les systèmes optiques

CHOCs **FOCUS** n°1 Juin 2010  
Actualités scientifiques à la Direction des applications militaires

cea

énergie atomique • énergies alternatives

1999 - 2009

**10**

**ans**  
**years**

de collaboration sur le  
**Laser Omega**

of collaboration on  
**Omega Laser Facility**

UR  
LLE 

## NOUVEAU

La rédaction de la revue *chocs* édite un fascicule célébrant **10 années de collaboration** entre le CEA et l'Université de Rochester (USA) sur le laser Omega.

Pour commander ce recueil, s'adresser par courrier électronique à : [chocs@cea.fr](mailto:chocs@cea.fr)



énergie atomique • énergies alternatives

Direction  
des applications militaires  
[www-dam.cea.fr](http://www-dam.cea.fr)

