



**HAL**  
open science

# Étude et développement d'une source d'ions équipée d'une cathode à nanotubes de carbone, émettrice d'électrons par effet de champ avec une application aux tubes neutroniques scellés

Marie Quentin-Schindler

► **To cite this version:**

Marie Quentin-Schindler. Étude et développement d'une source d'ions équipée d'une cathode à nanotubes de carbone, émettrice d'électrons par effet de champ avec une application aux tubes neutroniques scellés. Planète et Univers [physics]. Sorbonne Université, 2024. Français. NNT : 2024SORUS251 . tel-04796055

**HAL Id: tel-04796055**

**<https://theses.hal.science/tel-04796055v1>**

Submitted on 21 Nov 2024

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

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

# Sorbonne Université

Ecole doctorale d'Astronomie & d'Astrophysique d'Ile-de-France – ED 127

*Sodern - Laboratoire Atmosphères, Milieux, Observations Spatiales (LATMOS)*

## **Etude et développement d'une source d'ions équipée d'une cathode à nanotubes de carbone, émettrice d'électrons par effet de champ avec une application aux tubes neutroniques scellés**

Par Marie QUENTIN--SCHINDLER

Thèse de doctorat de physique appliquée

Présentée et soutenue publiquement le vendredi 28 juin 2024 à Sorbonne Université sur le campus Pierre-et-Marie-Curie (Jussieu)

Devant un jury composé de :

Philippe SAVOINI	Professeur	Président
Tiberiu MINEA	Professeur	Rapporteur
Stephen PURCELL	Directeur de recherche émérite	Rapporteur
Lucie SABAUT	Ingénieure	Examinatrice
Jean-Charles MATEO-VELEZ	Ingénieur de recherche	Examineur
Costel-Sorin COJOCARU	Directeur de recherche	Examineur
François LEBLANC	Directeur de recherche	Directeur de thèse
Jean-Jacques BERTHELIER	Directeur de recherche émérite	Invité
Adrien CHEMINET	Ingénieur	Invité, Encadrant



## RÉSUMÉ

---

Sujet : Etude et développement d'une source d'ions avec une cathode à nanotubes de carbone, émettrice d'électrons par effet de champ avec une application aux tubes neutroniques scellés.

Ce projet de thèse, réalisé au sein de Sodern, filiale d'ArianeGroup, est dédié à l'optimisation des tubes neutroniques scellés. Ces dispositifs sont utilisés pour l'analyse de matière, principalement dans les secteurs pétrolier et minier. Ils fonctionnent sur le principe des accélérateurs de particules miniaturisés, générant des neutrons par la réaction de fusion deutérium-tritium.

La problématique centrale de cette recherche concerne la source d'ions des tubes, actuellement reposant sur une cathode froide de type Penning. Cette configuration présente des limitations significatives, telles qu'un contrôle inefficace de la décharge de plasma génératrice d'ions. Ce problème est exacerbé par une gigue (*jitter*), qui caractérise un manque de variabilité dans les largeurs de pulsations, et un retard à l'amorçage, qui est le décalage entre la mise sous tension de la source et l'extraction des ions. Pour surmonter ces obstacles, tout en limitant la puissance d'entrée, l'introduction d'une cathode émettrice d'électrons à base de nanotubes de carbone (CNT), fonctionnant par effet de champs, est envisagée du fait de la possibilité d'émettre sous relativement faible potentiel et sans ajout de température.

La méthodologie adoptée inclut initialement des tests d'émission électronique des CNT pour évaluer leur intégration pratique dans la source d'ions. Les paramètres opérationnels examinés comprennent l'environnement gazeux dans la gamme de pression des tubes, la durée de vie, la répétabilité, la température, et la pulsation neutronique. Ces investigations ont conduit au développement d'une source d'ions modifiée, intégrant une source de CNT. Cette intégration a d'abord été réalisée par simulation sur le logiciel CST Studio, puis par la conception d'une maquette. Cette dernière a été réalisée et testée en laboratoire pour caractériser ses propriétés temporelles. Les résultats montrent une réduction significative du retard à l'amorçage et du *jitter*, bien que cela ait entraîné une dégradation irréversible des CNT après quelques heures de fonctionnement. Ces essais montrent qu'un courant d'émission minimum permettrait ces améliorations.

En conclusion, cette thèse démontre le potentiel de l'ajout d'une source d'électrons pour améliorer les performances temporelles d'une source d'ions de type Penning.

Mots clés : cathode à nanotube de carbone ; effet de champ ; source d'ions Penning ; Tube neutronique



## ABSTRACT

---

**Subject:** Study and development of an ion source with a carbon nanotube cathode, emitting electrons by field effect with an application to sealed neutron tubes.

This doctoral project, carried out at Sodern, a subsidiary of ArianeGroup, is dedicated to the optimization of sealed neutron tubes. These devices are used for material analysis, primarily in the oil and mining sectors. They operate on the principle of miniaturized particle accelerators, generating neutrons through the deuterium-tritium fusion reaction.

The central issue of this research concerns the ion source of the tubes, currently based on a cold Penning-type cathode. This configuration presents significant limitations, such as inefficient control of the ion-generating plasma discharge. This problem is exacerbated by jitter, which characterizes variability in pulse widths, and a delay in ignition, which is the lag between powering the source and ion extraction. To overcome these obstacles while limiting power input, the introduction of a carbon nanotube (CNT) based electron-emitting cathode, operating by field effect, is considered due to its ability to emit under relatively low potential and without added temperature.

The methodology adopted initially includes tests of CNT electron emission to evaluate their practical integration into the ion source. The operational parameters examined include the gaseous environment in the pressure range of the tubes, lifespan, repeatability, temperature, and neutron pulsation. These investigations led to the development of a modified ion source, integrating a CNT source. This integration was first carried out by simulation on CST Studio software, then by the design of a prototype. This prototype was realized and tested in the laboratory to characterize its temporal properties. The results show a significant reduction in ignition delay and jitter, although this has led to irreversible degradation of the CNTs after a few hours of operation. These tests show that a minimum emission current would allow these improvements.

In conclusion, this thesis demonstrates the potential of adding an electron source to improve the temporal performance of a Penning-type ion source.

Keywords: carbon nanotube cathode; field effect; Penning ion source; Neutron tube



## SOMMAIRE

<b>RÉSUMÉ</b>	<b>I</b>
<b>ABSTRACT</b>	<b>III</b>
<b>SOMMAIRE</b>	<b>V</b>
<b>INTRODUCTION GENERALE</b>	<b>1</b>
<b>I. LE NEUTRON</b>	<b>5</b>
A. PHYSIQUE FONDAMENTALE DU NEUTRON	5
I.A.1 <i>Carte d'identité de la particule</i>	5
I.A.2 <i>Interaction des neutrons avec la matière</i>	10
B. GÉNÉRATION DE NEUTRONS	15
I.B.1 <i>Différentes méthodes/mécanismes</i>	15
I.B.2 <i>Exemples et applications</i>	23
<b>II. SOURCE NEUTRONIQUE ÉLECTRIQUE</b>	<b>33</b>
A. GÉNÉRALITÉS	33
II.A.1 <i>Principe de fonctionnement</i>	33
II.A.2 <i>Paramètre d'évaluation</i>	35
II.A.3 <i>Architecture globale</i>	37
II.A.4 <i>Applications</i>	38
B. COMPOSANTS	41
II.B.1 <i>Réservoir de gaz</i>	41
II.B.2 <i>Source d'ions</i>	43
II.B.3 <i>Extraction et Accélération</i>	54
II.B.4 <i>Cible neutronigène</i>	56
II.B.5 <i>Instruments Et Systèmes</i>	57
II.B.6 <i>Cas particulier des tubes scellés équipés d'une source d'ions de Penning</i>	58
<b>III. SOURCE D'ÉLECTRONS</b>	<b>61</b>
A. PHYSIQUE	61
III.A.1 <i>Émission thermoïonique</i>	61
III.A.2 <i>Effet photoélectrique</i>	62
B. EFFET DE CHAMPS	63
III.B.1 <i>Modèle de Fowler-Nordheim</i>	64
III.B.2 <i>Effet de pointe</i>	64
III.B.3 <i>Source à effet de champs</i>	67
C. NANOTUBES DE CARBONE	68
III.C.1 <i>Structure des nanotubes de carbone</i>	68
III.C.2 <i>Synthèse des nanotubes de carbone</i>	70
D. PROPRIÉTÉS	72
III.D.1 <i>Propriétés thermiques</i>	74
III.D.2 <i>Propriété mécanique</i>	74
III.D.3 <i>Propriétés optiques</i>	74

E.	APPLICATIONS DES CNT EN TANT QUE SOURCE D'ÉLECTRONS	75
III.E.1	<i>Tube à rayons X et hyperfréquence</i>	75
III.E.2	<i>Spectromètre de masse</i>	76
III.E.3	<i>Source directe d'ionisation</i>	77
<b>IV.</b>	<b>VALIDATION DES CNT POUR LES SOURCES D'IONS PENNING</b>	<b>81</b>
A.	DÉMARCHE, MATÉRIEL ET MÉTHODE	82
IV.A.1	<i>Présentation des échantillons</i>	82
IV.A.2	<i>Banc d'essais Sodern</i>	85
B.	ÉTUDE DE L'ÉMISSION ÉLECTRONIQUE À TEMPÉRATURE AMBIANTE ET SOUS VIDE	89
IV.B.1	<i>Dégazage des nanotubes</i>	89
IV.B.2	<i>Variation de la distance inter-électrode</i>	90
IV.B.3	<i>Étude longue durée</i>	93
IV.B.4	<i>Emission en Mode Pulsé</i>	95
IV.B.5	<i>Variation du courant en fonction de la montée et de la descente de tension</i>	97
C.	ÉTUDE EN TEMPÉRATURE	98
D.	ÉTUDE EN ATMOSPHERE DE DEUTERIUM	100
IV.D.1	<i>Variation de la pression</i>	100
IV.D.2	<i>Stockage de l'hydrogène par les CNT</i>	101
IV.D.3	<i>Expériences</i>	102
E.	RÉPÉTABILITÉ	106
F.	CONCLUSIONS GÉNÉRALES	108
<b>V.</b>	<b>OPTIMISATION PAR SIMULATION NUMÉRIQUE D'UNE SOURCE D'IONS INTÉGRANT DES CNT</b>	<b>111</b>
A.	DÉMARCHE	111
B.	CST STUDIO SUITE	113
V.B.1	<i>Solveurs</i>	113
V.B.2	<i>Paramètres</i>	116
C.	DESCRIPTION DE LA SIMULATION	121
V.C.1	<i>Géométrie Globale</i>	121
V.C.2	<i>Conditions</i>	122
V.C.3	<i>Simulation de l'aimant permanent</i>	124
D.	SOURCE D'ÉMISSION ÉLECTRONIQUE DES CNT	125
V.D.1	<i>Choix géométrique</i>	125
V.D.2	<i>Paramètres de modélisation</i>	126
V.D.3	<i>Choix du solveur et grandeurs observés</i>	129
E.	RÉSULTATS DES SIMULATIONS	130
V.E.1	<i>Géométrie</i>	130
V.E.2	<i>Champs électromagnétiques</i>	132
V.E.3	<i>Ratio tension aimantation</i>	134
<b>VI.</b>	<b>ANALYSE DE LA SOURCE D'IONS CNT</b>	<b>139</b>
A.	PRÉSENTATION DE LA MAQUETTE	139
VI.A.1	<i>Données d'entrées et contraintes</i>	139
VI.A.2	<i>La source électronique</i>	140
VI.A.3	<i>Espace d'ionisation</i>	142
VI.A.4	<i>Cathode extractrice</i>	143
VI.A.5	<i>Interfaces</i>	143
VI.A.6	<i>Géométrie finale</i>	146
B.	PRESENTATION DU DISPOSITIF EXPERIMENTAL	148

VI.B.1	<i>Banc d'essai EPSILON</i>	148
VI.B.2	<i>Assemblage de la maquette</i>	151
VI.B.3	<i>Montage en bâti</i>	152
C.	CAMPAGNE D'ESSAIS	153
VI.C.1	<i>Mode pulsé</i>	153
VI.C.2	<i>Essais SI de référence</i>	154
VI.C.3	<i>Essai SI sans CNT</i>	155
VI.C.4	<i>Caractérisation expérimentale de la SI CNT</i>	158
VI.C.5	<i>Test CI CNT</i>	159
D.	ANALYSE DES RÉSULTATS	161
VI.D.1	<i>Comparaison des différentes configurations</i>	161
VI.D.2	<i>Courant minimum pour limiter le temps de retard</i>	164
E.	DÉGRADATION DES CNT	165
VI.E.1	<i>Constat</i>	165
VI.E.2	<i>Test de CNT sous plasma pendant 96h</i>	166
VI.E.3	<i>Pollution des CNT</i>	167
<b>CONCLUSION GÉNÉRALE ET PERSPECTIVES</b>		<b>169</b>
<b>VII. BIBLIOGRAPHIE</b>		<b>173</b>
<b>VIII. ANNEXES</b>		<b>187</b>
<hr/>		
A.	APPLICATIONS DES TUBES NEUTRONIQUES	187
B.	DÉMONSTRATION DE LA LOI DE FOWLER-NORDHEIM	189
C.	CHIRALITÉ DES CNT	192
D.	: ETAT DE L'ART DE E.MINOUX (E.MINOUX, 2006)	194
E.	PRÉSENTATION DU SPECTROMÈTRE INEA	196
F.	SIMULATION ES PIC DE LA SI CNT	198
G.	ESSAIS SUR LES CNT AU LATMOS	200
H.	ESSAIS SUR LES ANODES DES SI SODILOG	205



## INTRODUCTION GENERALE

---

Les nanotubes de carbone, découverts en 1991 par Sumio Iijima, ont rapidement attiré l'attention des scientifiques et des ingénieurs du monde entier en raison de leurs propriétés uniques et de leur potentiel révolutionnaire dans de nombreux domaines. Ces structures cylindriques, composées de feuilles de graphite enroulées, présentent une gamme impressionnante de caractéristiques, allant de leur résistance mécanique exceptionnelle à leur conductivité électrique et thermique remarquable.

Depuis leur découverte, les nanotubes de carbone ont été étudiés intensivement dans de nombreux domaines de la science et de la technologie. Leur structure unique confère des propriétés électriques et optiques exceptionnelles, les rendant prometteurs pour une grande variété d'applications. L'une des applications les plus notables des nanotubes de carbone est leur utilisation dans la fabrication de matériaux composites. En raison de leur incroyable résistance mécanique, les nanotubes de carbone renforcent considérablement la résistance et la durabilité des matériaux composites, les rendant idéaux pour une utilisation dans l'aérospatiale, l'automobile, et d'autres industries.

Les nanotubes de carbone sont également utilisés dans le développement de matériaux absorbants noirs, une application importante notamment dans le domaine de l'optique et de l'énergie solaire. En exploitant leur structure en nanotubes, ces matériaux sont capables d'absorber la lumière sur une large gamme de longueurs d'onde, ce qui les rend efficaces pour réduire la réflexion de la lumière et augmenter l'absorption de l'énergie lumineuse. Soderstrom considère leur mise en œuvre comme traitement noir (type *Vantablack : Vertically Aligned NanoTube Array BLACK*) appliqué sur les surfaces internes des baffles de ses viseurs d'étoiles pour réduire au maximum la lumière parasite arrivant sur le détecteur de ces dispositifs grâce à un coefficient d'absorption record de 99,965 %.

Outre la mécanique et l'optique, les nanotubes de carbone trouvent également des applications dans le domaine de l'électronique. En raison de leur haute conductivité électrique, les nanotubes de carbone sont utilisés comme composants dans les dispositifs électroniques à haute performance tels que les transistors et les capteurs. Leur petite taille et leur excellente conductivité électrique les rendent également prometteurs pour une utilisation dans les circuits intégrés et les dispositifs nanotechnologiques.

Toujours en lien avec la physique des électrons, les nanotubes de carbone sont également utilisés comme sources d'électrons par effet de champ, une application particulièrement intéressante et prometteuse. En exploitant leur structure nanométrique et leurs propriétés électroniques exceptionnelles, les nanotubes de carbone peuvent être utilisés pour émettre des électrons à partir de leur extrémité avec une efficacité élevée sous l'application d'un champ électrique élevé. Cette propriété les rend précieux dans diverses applications telles que les tubes à rayons X miniatures, les microscopes électroniques à balayage et les dispositifs d'affichage à émission de champ (FED).

A propos des tubes à rayons X miniatures, les nanotubes de carbone sont utilisés pour générer des faisceaux d'électrons à haute énergie, qui sont ensuite accélérés vers une cible pour produire des rayons X. Cette technologie offre des avantages significatifs en termes de taille, de poids et de consommation d'énergie par rapport aux tubes à rayons X conventionnels, ouvrant la voie à de nouvelles applications dans des domaines tels que la médecine diagnostique, l'imagerie industrielle et la sécurité.

---

Plus récemment, le LATMOS a intégré cette technologie pour remplacer avantageusement la source d'électrons thermoïonique des analyseurs d'ions en énergie. L'instrument appelé INEA (*Ion and Neutral Energy Analyzer*) est conçu pour mesurer les fonctions de distribution, en densité, masse, température et vitesse de dérive dans l'axe de l'instrument des particules pouvant être trouvées dans les hautes atmosphères terrestres ou martiennes par exemple. Pour ioniser ces particules afin de pouvoir les mettre en mouvement et les discriminer dans un champ électrostatique généré par l'instrument, un faisceau d'électrons de basse énergie est généré grâce à une source de nanotubes de carbone ne nécessitant pas une consommation excessive de puissance contrairement aux filaments de tungstène traditionnellement utilisés dans ce type de missions spatiales.

Voyant les nombreux avantages de ces nanotubes de carbone, Sodern s'est posé la question de l'intérêt ou non de ce nouveau matériau pour ses tubes neutroniques scellés. Les tubes neutroniques sont des accélérateurs de particules miniaturisés qui génèrent des neutrons par réaction de fusion nucléaire impliquant des isotopes de l'hydrogène : le deutérium et le tritium. Pour atteindre les conditions nécessaires à la fusion, les noyaux d'hydrogène sont accélérés sous forme ionique sous l'effet d'un champ électrique intense généré par une différence de potentiel de quelques dizaines à la centaine de kilovolts appliqués entre deux électrodes métalliques, respectivement l'anode et la cathode, distantes de quelques millimètres jusqu'à quelques centimètres.

Les ions d'hydrogène, sous forme monoatomique  $H^+$  ou moléculaire diatomique  $H_2^+$ , sont créés au sein de la source d'ions et sont extraits de cette dernière pour former le faisceau d'ions qui bombarde la cathode, également nommée cible où sont produits les neutrons. Les sources d'ions des tubes commerciaux de Sodern reposent sur le principe de la décharge Penning qui se produit à relativement basse pression de dihydrogène (quelques  $10^{-4}$  à  $10^{-2}$  mbar) dans un dispositif couplant un champ magnétique généré par un aimant permanent et un champ électrique résultant de l'application d'une haute tension de quelques kilovolts.

Cette décharge se produit spontanément dès que l'on applique une haute tension au sein de la source d'ions grâce à l'émission par effet de champ de quelques électrons précurseurs dans la chambre d'ionisation. Cela permet de piloter l'émission neutronique du tube en allumant et éteignant la haute tension d'alimentation de la source d'ions. L'émission pulsée des neutrons permet de mettre en œuvre des méthodes d'analyse de la matière telles que le PFNA (*Pulsed Fast Neutron Analysis*), méthode utilisée dans les produits commercialisés par Sodern : les CNA (*Controlled Neutron Analyzer*) et les sondes minières FastGrade™.

Pour améliorer les performances de ces analyseurs, un bon contrôle temporel des séquences d'émission (largeur et fréquence des impulsions) est nécessaire. Les sources de Penning sont limitées par leur cathode froide, à l'origine d'un retard à l'amorçage de quelques à quelques dizaines de microsecondes entre l'instant où la tension est appliquée et le moment où le plasma est établi au sein de la source. Une autre problématique connexe constatée est la variabilité de ce retard d'une impulsion à l'autre, que l'on appelle gigue (ou *jitter*).

L'idée de ces travaux est donc d'injecter de manière contrôlée des électrons dans la chambre d'ionisation afin de mieux maîtriser les constantes de temps relatives à l'apparition du plasma et donc de l'émission pulsée des neutrons. La démarche consistera donc à étudier pas à pas l'intégration d'une source d'électrons par effet de champ à base de nanotubes dans la source d'ions d'un tube neutronique. Pour ce faire, ce manuscrit est structuré en six chapitres, chacun décrivant une étape de ce développement.

Le premier chapitre est dédié à la physique du neutron. Il s'agit d'un prérequis indispensable pour aborder la technologie des systèmes neutroniques développés par Sodern. Ce chapitre présente donc les propriétés fondamentales de cette particule élémentaire, aborde les réactions lui donnant naissance et décrit ses modes d'interactions avec la matière.

Le second chapitre décrit en détail le fonctionnement d'un tube neutronique scellé en présentant les différents composants que l'on retrouve classiquement dans l'architecture de ces dispositifs. Ainsi, sont évoqués successivement le réservoir de gaz permettant de stocker le gaz et de mettre le tube sous pression d'hydrogène, la source d'ions qui a pour rôle d'ioniser ce gaz, la colonne d'accélération conférant l'énergie cinétique aux ions dirigés vers la cible où se produit la réaction de fusion. La source d'ions est particulièrement mise en avant pour montrer le lien ténu entre ce composant et les performances finales du tube neutronique.

Le troisième chapitre est consacré aux sources d'électrons. Il introduit tout d'abord les principaux moyens d'émission électronique et la physique associée, en particulier l'émission par effet de champ au cœur de ces travaux. L'application des nanotubes de carbone est ensuite évoquée avec un rappel de leurs propriétés et quelques exemples illustrant leur mise en œuvre dans des dispositifs nécessitant une source d'électrons pilotées.

Le quatrième chapitre synthétise une étude expérimentale ayant pour objectif de démontrer que les sources d'électrons par effet de champ à base de nanotubes de carbone peuvent être utilisées dans les conditions opérationnelles des tubes neutroniques et les contraintes qui en découlent. Ainsi, des campagnes d'essais ont été organisées pour tester, sur un banc de test de Sodern, plusieurs échantillons de substrats avec une surface recouverte de nanotubes et en faisant varier différents paramètres tels que la pression en hydrogène, la température, le mode d'émission – continu ou pulsé. D'autres aspects comme la durée de vie (endurance) et la reproductibilité/répétabilité (entre deux échantillons ou entre deux tests sur le même échantillon) ont également été caractérisés.

Le cinquième chapitre évoque l'intégration d'une telle source d'électrons dans une source d'ions de type Penning avec une approche par simulation numérique. L'objectif est d'étudier les principaux paramètres géométriques et électriques régissant le transport des électrons au sein de la source d'ions afin d'en maximiser le trajet pour augmenter la probabilité d'ioniser le gaz et participer à la réaction en cascade à l'origine de la décharge plasma. Le logiciel CST Studio a été utilisé pour modéliser différentes géométries et simuler le fonctionnement de la source autour de différentes valeurs de tension et de champ magnétique.

Le sixième et dernier chapitre finalise la démonstration de l'intérêt des sources d'électrons externes dans les sources de Penning avec la conception, sur la base des données de simulation du chapitre précédent, la réalisation et la caractérisation complète d'une maquette de source d'ions intégrant une source d'électrons par effet de champ. Des résultats concluants ont été obtenus en testant cette maquette sur un autre banc de test de Sodern. Ces derniers sont analysés, comparativement au cas des sources de Penning sans apport externe d'électrons. D'autres phénomènes intéressants ont également pu être mis en évidence au cours de ces expériences. La prise en compte de ces observations aidera Sodern à améliorer le design de ses sources d'ions et *in fine* les performances de ses tubes neutroniques, ce qui était l'un des principaux objectifs de ces travaux.



## I. LE NEUTRON

---

Ce chapitre est dédié à la physique fondamentale du neutron, l'une des particules élémentaires de l'atome. Nous explorerons ses caractéristiques fondamentales, son histoire depuis sa découverte par James Chadwick et ses propriétés intrinsèques qui la caractérisent. Puis nous examinerons comment les neutrons interagissent avec la matière à travers différents phénomènes physiques. Ce chapitre abordera également la génération des neutrons en présentant diverses méthodes et mécanismes qui permettent de produire cette particule allant jusqu'aux exemples naturels et artificiels.

Ce chapitre jettera les bases nécessaires pour une compréhension approfondie de l'utilisation des neutrons dans divers domaines de la recherche et de l'industrie, dont l'application des tubes neutroniques que nous verrons par la suite.

### A. PHYSIQUE FONDAMENTALE DU NEUTRON

#### I.A.1 CARTE D'IDENTITÉ DE LA PARTICULE

##### I.A.1.1 Historique de la découverte (Chadwick)

Jusqu'au tournant du XX<sup>ème</sup> siècle, les atomes étaient considérés comme les constituants ultimes de la matière. Suite à la découverte de la radioactivité en 1896 (Röntgen, 1895) (Becquerel, 1896) via la découverte des rayons X par Röntgen et par la suite des travaux de Pierre et Marie Curie (Curie, 1903), les scientifiques se sont demandé si l'atome n'était pas lui-même un objet composé. En 1911, Rutherford (Rutherford, 1911) s'intéressant à la radioactivité fait l'expérience de bombarder une feuille mince d'or de particules chargées positivement, nommées « alpha » ( ${}^4\text{He}$  ou  $\alpha$ ), et remarque que les particules passent en majorité à travers la feuille et que quelques-unes dévient de leur trajectoire. Il met en évidence un nouveau modèle atomique où l'atome est constitué majoritairement de vide avec, en son centre, un noyau dense formé de particules chargées, le tout entouré d'électrons maintenus en orbites par interaction électromagnétique. Huit ans après, il démontre l'existence du proton au sein du noyau, particule possédant une charge positive et une masse bien supérieure à celle de l'électron connue depuis 1899 (Smith, 1997).

En 1932 (Chadwick, 1932), Chadwick s'intéressa aux travaux de Bothe, Becker (Bothe & Becker, 1930), Frédéric Joliot et Irène Curie (Joliot & Curie, 1932) concernant l'interaction du rayonnement alpha avec le noyau de  ${}^9\text{Be}$ . Lorsqu'un noyau d'hélium interagit avec le noyau de  ${}^9\text{Be}$ , il produit un rayonnement considéré comme neutre qui, lors de son interaction avec un écran, éjecte des particules de ce dernier. La capacité de ce rayonnement neutre à pénétrer des épaisseurs de matériau considérables tout en conservant son pouvoir de pénétration suggérait qu'il possédait une masse importante. Cette expérience permit à Joliot et Curie de mettre en évidence l'émission d'un proton par un écran en paraffine. Par la suite, Chadwick, en modifiant la nature de l'écran, démontra la création de particules plus lourdes telles que de l'hélium, du lithium ou du béryllium. À la suite de ses investigations, Chadwick parvint à la conclusion que le rayonnement neutre était une particule présentant une masse similaire à celle du proton, n'ayant pas de charge électrique, tout en ayant une énergie inférieure à 5 MeV. Il décida de désigner cette particule sous le nom de "neutron".

### I.A.1.2 Carte d'identité

Le neutron est caractérisé par sa masse légèrement supérieure à celle du proton avec lequel il constitue le noyau atomique (Saito & Thomas, 1995). Sa masse n'a pas pu être déterminée directement par spectrométrie de masse étant donné sa charge nulle. Elle a été déduite d'un atome de deutérium auquel a été soustrait la masse d'un proton, tous les deux étant orientables donc mesurables par spectrométrie de masse. On obtient une masse du neutron de 1,008664924 u (unité de masse atomique unifiée) soit  $1,6749 \times 10^{-27}$  kg, supérieure de 0,14 % à celle du proton.

En astrophysique, la charge électrique nulle du neutron est un élément clé pour comprendre l'évolution et la stabilité des étoiles. Lors des processus de fusion nucléaire au sein des étoiles, les noyaux légers se combinent pour former des noyaux plus lourds, libérant ainsi de l'énergie. La présence de neutrons dans ces processus est cruciale pour former des noyaux plus lourds, participant ainsi à la synthèse des éléments chimiques dans l'univers.

A l'état libre, le neutron est instable avec une durée de vie moyenne de 887,7 secondes, équivalent à une demi vie de 610,2 secondes ce qui correspond au temps nécessaire pour que la moitié des atomes se désintègrent naturellement. Via une désintégration  $\beta^-$ , il se désintègre en un proton, un électron et un antineutrino électronique ( $\bar{\nu}_e$ ) par l'intermédiaire d'un boson d'interaction faible  $W^-$ . Il s'agit du cas le plus simple de désintégration  $\beta$  correspondant à l'équation (I-1).



Avec :  $n$  neutron

$p$  proton

$e^-$  électron

$\bar{\nu}_e$  antineutrino

Depuis les années 90, plus de vingt expériences ont tenté de mesurer la durée de vie du neutron en cosmologie. Deux approches principales ont été utilisées : la méthode du faisceau, qui enregistre les produits de désintégration « bêta » d'un faisceau neutronique, et la méthode de la bouteille, emprisonnant des neutrons ultra-froids dans une enceinte.

Le résultat le plus récent de 2021 indique une durée de vie de 877,75 secondes (Gonzalez, 2021), avec une incertitude statistique de 1,2 seconde et une incertitude systématique de 1,9 seconde. La combinaison de ces incertitudes donne une valeur totale d'incertitude de 2,2 secondes pour la durée de vie moyenne des neutrons, avec une probabilité de 68 % que la véritable valeur diffère de moins de 2,2 secondes de la valeur mesurée.

Une fois incorporé dans un noyau atomique, le neutron trouve un environnement propice à sa stabilité. L'interaction forte, qui maintient les protons et les neutrons ensemble, compense la répulsion électrostatique entre les protons.

Nous ne pouvons pas accélérer les neutrons comme nous pouvons accélérer les particules chargées sous l'effet d'un champ électromagnétique externe, mais nous pouvons, lorsque le neutron est à haute énergie (supérieure à 1 keV), réduire sa vitesse par collisions avec des noyaux d'atomes de divers matériaux sans nécessairement les absorber. Ce processus de ralentissement est appelé thermalisation des neutrons. Il est particulièrement utilisé dans les réacteurs nucléaires de façon à

maintenir la réaction en chaîne de fissions nucléaires. On classe alors les neutrons selon leur gamme d'énergie comme sur le Tableau I-1 :

Thermique :	< 1 eV
Epithermique :	1 eV – 1 keV
Rapide :	1 keV – 20 MeV
Ultrasrapide :	> 20 MeV

Tableau I-1 : Plages énergétiques des neutrons

Les énergies des neutrons sont définies en termes de vitesse ( $m \cdot s^{-1}$ ) ou de longueur d'onde (m) en raison de leurs propriétés ondulatoires. Les valeurs de l'énergie  $E$ , de la vitesse  $v$  et de la longueur d'onde  $\lambda$  du neutron, comme c'est le cas pour toutes les particules en mouvement, sont interdépendantes, reliées par l'équation de l'énergie cinétique (I-2) :

$$E = \frac{1}{2}mv^2 \quad (I-2)$$

Avec :  $E$  l'énergie (J)

$m$  la masse du neutron (kg)

$v$  la vitesse ( $m \cdot s^{-1}$ )

Louis Victor de Broglie a été le premier à postuler en 1923 (De Broglie, 1923) que toutes les particules ou matières en mouvement devraient avoir des caractéristiques ondulatoires. Nous attribuons donc la longueur d'onde des particules en mouvement aux longueurs d'onde de De Broglie avec l'équation (I-3). Elle prend en compte la masse du neutron  $m_n$ , son énergie  $E$  et la constante de Planck réduite (ou constante de Dirac) notée  $\hbar$  soit  $h/2\pi$ . On utilise alternativement la vitesse  $v$ , l'énergie cinétique  $E$  ou la longueur d'onde de De Broglie.

$$\lambda = \frac{h}{p} = \frac{h}{mv} = \frac{2\pi\hbar}{\sqrt{2m_n E}} \quad (I-3)$$

Avec :  $\lambda$  la longueur d'onde (m)

$h$  la constante de Planck ( $6,63 \times 10^{-34}$  J·s)

$p$  l'impulsion (m)

Le neutron, avec son spectre d'énergie s'étendant du peV au GeV, donne lieu à divers interactions caractérisées par leur section efficace. En d'autres termes, cette grandeur offre une indication quantitative de la facilité avec laquelle chaque interaction peut se produire. La notion de section efficace microscopique  $\sigma$ , souvent exprimée en unités de barn ( $1 \text{ barn} = 10^{-28} \text{ m}^2$ ), représente la probabilité d'une interaction particulière entre une particule, ici le neutron, et un noyau cible. La section efficace neutronique dépend de plusieurs facteurs, notamment la nature du noyau cible ou de l'isotope, le type de réaction (capture, fission, etc.), l'énergie du neutron incident ( $v^2$ ) et l'énergie du noyau cible qui est souvent corrélée à la température du matériau cible. Comme le montre la Figure I-1, la section efficace de capture des neutrons est inversement proportionnelle à la vitesse des neutrons, étant donné l'absence de barrière coulombienne répulsive. Plus sa vitesse est faible, plus la probabilité de réaction est élevée.

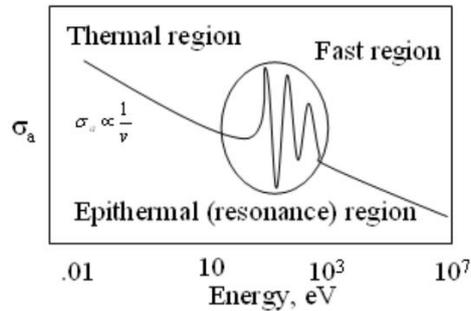


Figure I-1 : Section efficace d'activation en fonction de l'énergie du neutron

Typiquement les neutrons rapides, à forte énergie cinétique, vont avoir un comportement similaire à une particule, là où le comportement d'un neutron thermique, soit avec une énergie cinétique inférieur à l'électronvolt, va être dicté par la dualité onde-corpuscule.

Dans les matériaux qui s'y prêtent, ces particules sont susceptibles de diffuser, c'est-à-dire de traverser la matière, et de se ralentir jusqu'à ce qu'elles soient absorbées. Etant électriquement neutres, les neutrons n'interagissent qu'avec les noyaux des atomes, dix-mille à cent mille fois plus petits que les atomes eux-mêmes leur permettant de parcourir des distances de l'ordre du centimètre.

Voici quelques exemples de sections efficaces pour des neutrons thermiques de  $2200 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  :

Isotope	Section efficace de diffusion (barn)	Section efficace d'absorption (barn)	Section efficace de fission (barn)
Hydrogène	82	0,33	0
Bore	5,24	767	0
U238	8,8	2,68	0
U235	14	680	580

Tableau I-2 : Sections efficaces de neutrons (NIST, 2021)

La section efficace est une notion couramment employée en radioprotection, impliquant deux mécanismes distincts : d'abord, le ralentissement par diffusion à travers des matériaux hydrogénés, suivi de l'absorption par du Bore ou du Cadmium. En examinant la section efficace de fission de l'uranium 235 avec des neutrons, on observe qu'elle s'élève à 580 barns. Cependant, cet isotope ne représente qu'une infime proportion de l'uranium naturel, soit 0,7 %. La majeure partie, soit 99,3 %, est constituée d'uranium 238, dont la section efficace de fission pour les neutrons thermiques est nulle. Pour être utilisé dans les réacteurs à eau, il doit être enrichi en uranium 235 à hauteur de 4 à 5 %. Ainsi, la section efficace pour la fission passe de 4,06 barns à 23,2 barns, multipliant ainsi par cinq la probabilité de provoquer une fission.

Jusqu'ici nous avons parlé de section efficace microscopique mais généralement la particule est confrontée à plusieurs couches d'atomes dans un matériau. Pour prendre en compte cette épaisseur, on parle de section efficace macroscopique  $\Sigma$ . Elle est définie comme la probabilité pour un neutron d'interagir avec une cible par unité de longueur représentée par l'équation (I-4) et donc s'exprimant en  $\text{cm}^{-1}$ . La distinction entre la section efficace macroscopique et microscopique est que la première est une propriété d'un morceau spécifique de matériau (avec sa densité), tandis que la seconde est une propriété intrinsèque d'un type de noyau.

$$\Sigma = n \sigma \quad (I-4)$$

Avec :  $n$  la densité volumique d'atomes (atome·cm<sup>-3</sup>)

Le libre parcours moyen  $l$  est défini, via l'équation (I-5), comme l'inverse de la section efficace macroscopique et s'exprime en cm. Il s'agit de la distance moyenne que peut parcourir un neutron dans la matière avant de subir un type donné d'interaction. On parlera donc de libre parcours moyen d'une particule dans un milieu donné.

$$l = \frac{1}{n\sigma} \quad (I-5)$$

Cette notion est utile parce que d'elle découle la loi de Beer Lambert : une relation empirique reliant l'atténuation d'un faisceau aux propriétés du milieu qu'il traverse et à l'épaisseur traversée.

La diminution d'intensité du faisceau,  $dI$ , passant à travers une épaisseur  $dx$  est égale à l'intensité du faisceau incident,  $I$ , multiplié par la probabilité de collision  $n\sigma$ , représentée dans l'équation (I-6) dont la solution connue est l'équation(I-7).

$$dI = In\sigma dx \quad (I-6)$$

$$I(x) = I_0 e^{-x/l} \quad (I-7)$$

Avec :  $x$  la distance parcourue par le faisceau dans la matière (cm)

$l$  le libre parcours moyen (cm)

$I_0$  l'intensité du faisceau à  $x = 0$

### I.A.1.3 Propriétés intrinsèques

Si l'on regarde la composition élémentaire du neutron, il est constitué de trois quarks : deux quarks de type down et un quark de type up, formant un triplet de quarks. Cette combinaison de quarks, régie par l'interaction forte, est maintenue ensemble par l'échange constant de gluons. Il est important de noter que les quarks à l'intérieur du neutron sont confinés et ne peuvent jamais être observés directement en tant que particules libres en raison du phénomène de confinement de la chromodynamique quantique (Nambu, 1976).

Le neutron est caractérisé par son moment angulaire intrinsèque, appelé spin. Contrairement à la charge électrique, le spin n'a pas d'analogie classique, mais il est essentiel pour décrire le comportement magnétique des neutrons. Hérité de sa nature fermionique en tant que particule composée de quarks, le neutron possède un spin de  $\frac{1}{2}$ . Selon le principe d'exclusion de Pauli, deux fermions identiques d'un même système ne peuvent se trouver dans le même état quantique.

On retrouve dans le Tableau I-3 , les caractéristiques du neutron.

Masse	1.008664924 u 929,27 MeV
Rayon	$8,62 \times 10^{-16}$ m
Charge électrique	0
Spin	$\frac{1}{2}$ (fermion)
Demi vie	610,2 s

Tableau I-3 : Tableau récapitulatif des caractéristiques du neutron

## I.A.2 INTERACTION DES NEUTRONS AVEC LA MATIÈRE

En reprenant les caractéristiques du neutron, on s'attend à avoir une particule qui traverse facilement la matière parce qu'elle n'a pas de charge entraînant de la répulsion ou de l'attraction. Cette même propriété l'amène à interagir avec le noyau et non avec le nuage électronique.

Lorsqu'un neutron incident interagit avec un matériau cible, son comportement est donc influencé par les propriétés nucléaires et atomiques de la cible, on parle alors d'interaction entre le neutron et les atomes constituant la cible. On classe ces interactions en deux catégories :

- Les réactions de diffusion où l'un des produits de la réaction est un neutron ;
- Les réactions d'absorption du neutron par la cible qui regroupent les transmutations, l'activation.

Nous allons par la suite définir chacune des interactions possibles par le neutron.

### I.A.2.1 Diffusions

On entend par diffusion, la modification de la trajectoire et de l'énergie du neutron incident après un choc avec un noyau. On distingue alors deux types de diffusion : élastique (n, n) et inélastique (n, n').

#### I.A.2.1.1 Diffusion élastique

Dans le cas de la diffusion élastique, l'énergie cinétique totale est conservée, le noyau cible reste dans le même état quantique qu'avant interaction mais la direction de propagation du neutron est modifiée. Par analogie avec la mécanique classique, cette interaction est comparée au choc entre deux boules de billard.

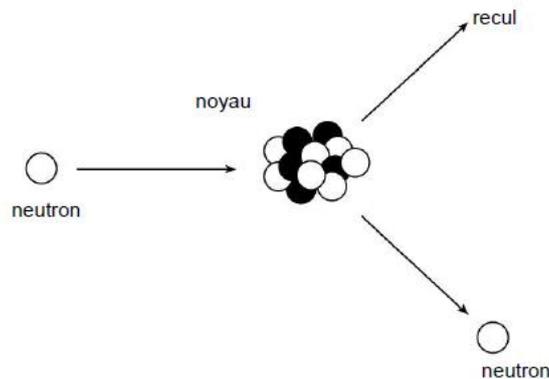


Figure I-2 : Diffusion élastique (CANDU Fundamentals, 2004)

Cependant, une fraction de l'énergie cinétique du neutron est transférée au noyau pendant l'interaction. Pour un neutron d'énergie cinétique  $E$  rencontrant un noyau de poids atomique  $A$ , la perte d'énergie moyenne  $E_p$  est donnée par l'expression suivante :

$$E_p = \frac{2EA}{(A + 1)^2} \quad (I-8)$$

Pour ralentir les neutrons en minimisant le nombre de collisions élastiques, il est préférable d'utiliser des noyaux cibles avec un faible A. L'utilisation de l'hydrogène, avec  $A = 1$ , maximise la perte d'énergie moyenne, atteignant  $E/2$ . On considère ces éléments comme des « ralentisseurs de neutrons ».

La diffusion est l'une des interactions de choix pour l'étude de la matière à l'échelle atomique. En effet, les neutrons utilisés pour la diffusion sont exclusivement des neutrons thermiques. En reprenant la relation de Broglie qui relie le moment d'une particule à celui d'une onde plane ainsi que la relation de Boltzmann entre l'énergie  $E$  et la température  $T$ , nous obtenons la relation (I-9) :

$$E = k_b T = \frac{1}{2} m v^2 = \frac{1}{\lambda^2} \frac{h^2}{2m} \quad (\text{I-9})$$

Avec :  $k_b$  la constante de Boltzmann soit  $1,381 \times 10^{-23} \text{ J}\cdot\text{K}^{-1}$

$m$  la masse en kg

$v$  la vitesse en  $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$

$h$  la constante de Planck soit  $6,626 \times 10^{-34} \text{ J}\cdot\text{s}$

$\lambda$  la longueur d'onde en  $\text{m}^{-1}$

### Interaction Diffusion Réseau Cristallin

Cette relation entre l'énergie et la température, appliqué à des neutrons thermiques de l'ordre de l'électronvolt au kiloélectronvolt, nous permet d'obtenir des longueurs d'onde comprise entre 0,5 et  $20 \times 10^{-10} \text{ m}$ . Ces longueurs d'onde, de l'ordre de l'angström, sont comparables à des distances interatomiques.

En se basant sur la diffraction des rayons X, nous retrouvons un phénomène semblable pour les neutrons ultra froids. Ces neutrons ont une énergie cinétique inférieure à 250 neV une vitesse inférieure à 7 m/s. Tant que la vitesse du neutron projeté à une surface est inférieure à la vitesse limite de pénétration, celui-ci sera réfléchi. Cette vitesse limite est dépendante du potentiel de Fermi qui traduit la répartition des électrons dans le matériau. On retrouve alors un phénomène de diffraction dû à la diffusion cohérente du faisceau de neutrons monochromatique qui obéit à la loi de Bragg :

$$2d \sin(\theta) = n \lambda_n \quad (\text{I-10})$$

Avec :  $d$  la distance inter-réticulaire soit la distance entre deux plans d'un cristal

$\lambda_n$  la longueur d'onde de l'onde sortante

$\theta$  l'angle incident de l'onde neutronique

$n$  l'ordre de diffraction

L'avantage de cette interaction est qu'elle et peut être adaptée à des conditions extrêmes de température, de pression, de champ magnétique ou électrique. De plus, elle peut être combinée avec d'autres techniques de mesure comme la spectroscopie Raman ou la résonance magnétique nucléaire (RMN). Cette interaction permet, par exemple, aux scientifiques de cartographier le mouvement d'objets minuscules comme celui des virus le long d'une membrane biologique (V. Nesvizhevsky, 2013).

### I.A.2.1.2 Diffusion inélastique

La diffusion inélastique, similaire à la diffusion élastique, entraîne cependant un réarrangement interne du noyau vers un état excité qui finit par libérer de la radiation comme le montre la Figure I-3. L'énergie cinétique totale du neutron sortant et du noyau est inférieure à l'énergie cinétique du neutron entrant avec une partie de l'énergie d'origine qui est utilisée pour placer le noyau dans l'état excité.

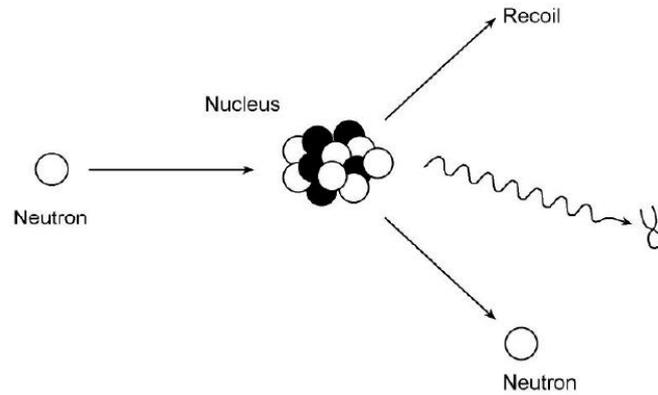


Figure I-3 : Diffusion inélastique (CANDU Fundamentals, 2004)

La diffusion inélastique modifie également la vitesse et la direction du neutron. Il est toutefois plus difficile d'exprimer la perte d'énergie moyenne en raison de la dépendance des niveaux d'énergie du noyau. Si tous les états excités du noyau ont une énergie trop élevée pour être atteints par l'énergie du neutron entrant, la diffusion inélastique est impossible. Si nous reprenons le cas du noyau d'hydrogène, qui n'a pas d'états excités, seule la diffusion élastique peut se produire.

### I.A.2.2 Absorption/Transmutation

Nous venons de voir les interactions où il n'y a pas de capture du neutron incident. Par la suite nous allons nous pencher sur le second cas : le noyau absorbe le neutron incident, il se transforme en un autre élément et acquiert un excès d'énergie qu'il va libérer de différentes manières :

- En émettant un rayonnement  $\gamma$  qui correspond aux réactions de capture puisque le neutron reste captif du noyau : le neutron est alors « perdu » ;
- En émettant un autre type de particule, changeant la nature du noyau, cela correspond aux transmutations ;
- En se scindant en deux fragments de plus petite masse et en émettant simultanément deux à trois neutrons et libérant une grande quantité d'énergie. On parle alors de fission. Ce dernier sera détaillé par la suite dans le chapitre Fission induite.

Un noyau peut absorber un neutron pour former un noyau composé, qui se désactive ensuite en émettant une particule. On distingue alors les captures en fonction du produit de sa réaction :

- Lorsqu'un isotope est émis, il s'agit de capture radiative ;
- Lorsque le produit de fission est un élément différent du noyau d'origine, on parle de transmutation.

#### I.A.2.2.1 Capture radiative ( $n, \gamma$ )

La capture radiative est la réaction nucléaire la plus courante. Elle s'exprime par l'équation (I-11) suivante :



Ce type de capture est appelé capture radiative, dû à l'émission d'un rayonnement  $\gamma$ . Nous pouvons l'illustrer avec la Figure I-4 où l'hydrogène absorbe un neutron pour produire du deutérium.

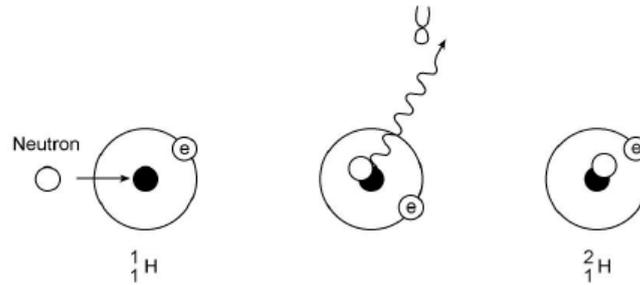


Figure I-4 : Capture radiative ( $n, \gamma$ ) (CANDU Fundamentals, 2004)



Cependant, de nombreux produits de capture sont radioactifs et sont des émetteurs bêta-gamma ; comme pour le Tritium ; isotope de l'hydrogène.

La probabilité qu'un matériau capture un neutron est proportionnelle à sa section efficace de capture, dépendant de l'énergie du neutron incident et de la nature du matériau. Deux plages de section efficace sont couramment utilisées : la section d'absorption pour les neutrons thermiques et une seconde plage où des résonances sont présentes. Cette seconde plage, généralement associée à des neutrons d'énergie supérieure à celle des neutrons thermiques, est un facteur de choix pour les absorbeurs de neutrons dans les réacteurs nucléaires.

#### I.A.2.2.2 Transmutation ( $n, p$ ) ( $n, \alpha$ ) ( $n, 2n$ )

Lors de sa désexcitation, le noyau peut émettre d'autres types de particules que les photons  $\gamma$ , engendrant un changement de nature du noyau. On retrouve principalement la création de proton (Figure I-5) ou de particule alpha  $\alpha$  (Figure I-5). Cette réaction est observée pour la première fois par Rutherford en 1900 dans la désintégration du radium (Rutherford E. , 1900). Lors de cette désintégration, le radium métallique devient un gaz lui-même radioactif, le radon.

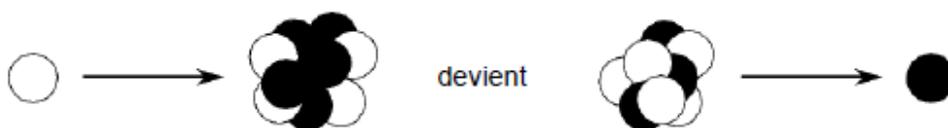
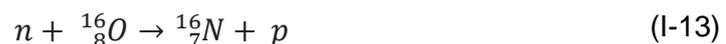
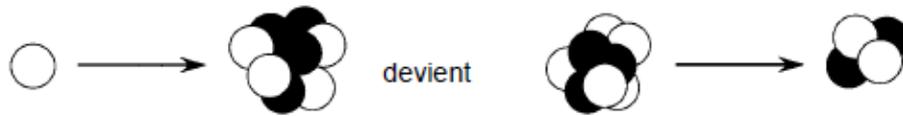
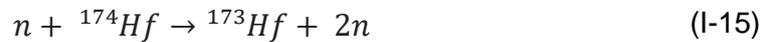


Figure I-5 : Transmutation ( $n, p$ ) de l'équation (I-13) (CANDU Fundamentals, 2004)



Figure I-6 : Transmutation  $(n, \alpha)$  de l'équation (I-14) (CANDU Fundamentals, 2004)Figure I-7 : Transmutation  $(n, 2n)$ 

Comme le montre R. Brune (Brune, 2015), les réactions de capture toutes confondues sont très présentes en astrophysique dues à deux caractéristiques. Tout d'abord, dues aux nombreux noyaux, les captures radiatives sont les seules réactions exothermiques ( $Q$  positif) lorsqu'il s'agit de protons ou de neutrons. Ensuite, elles se déroulent lentement par rapport aux interactions fortes, ce qui les rend déterminantes dans plusieurs cycles de réaction, contrôlant ainsi le flux réactionnel et le taux de nucléosynthèse.

#### I.A.2.2.3 Fission induite

Le dernier type d'interaction avec capture est la fission. Dans le cas de la fission, le noyau peut se scinder en deux fragments plus légers, émettant simultanément deux à trois neutrons et libérant une quantité significative d'énergie (typiquement autour de 200 MeV).

#### I.A.2.3 Interaction spin (moment magnétique)

En dernière interaction, l'on retrouve celle du neutron avec l'induction magnétique du milieu traversé, dont celle qui résulte d'électrons dépareillés dans les matériaux magnétiques. Le moment magnétique du neutron interagit avec des champs magnétiques, causés par les spins d'électrons non appariés dans un matériau. Les électrons ont des moments angulaires de spin et d'orbite qui vont créer un champ magnétique  $B$ . Ce moment magnétique est donc utilisé pour sonder la matière et étudier la structure nucléaire (Matea, 2003).

La constante physique qui relie le moment magnétique du neutron à son moment cinétique et/ou angulaire est appelé le magnéton nucléaire. Son sens physique est le petit moment magnétique associé à la particule.

## B. GÉNÉRATION DE NEUTRONS

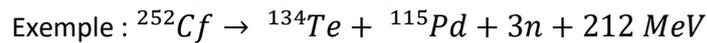
Nous venons de voir comment les neutrons interagissent avec la matière. Par la suite, ce chapitre se consacre à la compréhension des mécanismes sous-jacents à la libération de neutrons. Nous explorerons divers processus, notamment : la fission spontanée, fission induite (photo fission ou par neutron), la dissociation, la spallation pour terminer sur la fusion hydrogène.

### I.B.1 DIFFÉRENTES MÉTHODES/MÉCANISMES

#### I.B.1.1 Fission spontanée

La fission est un processus permettant d'obtenir deux noyaux distincts à haute énergie à partir d'un seul et même noyau. Elle est semblable à la fission définie dans le premier chapitre mais sans l'utilisation de neutron incident.

Dans certain cas, le radionucléide peut spontanément, sans particule incidente, se fissionner, émettant alors entre 2 et 4 neutrons. C'est une forme de désintégration radioactive que l'on retrouve uniquement dans des éléments chimiques très lourds, actuellement observés à partir du Thorium 230.



$$\text{Avec } A = A' + A'' + kn$$

$$Z = Z' + Z''$$

$k$  nombre entier

Un système fissile, quel qu'il soit dans son état fondamental, présente une probabilité faible mais finie d'être dans l'état énergétiquement favorable à la fission. Pour cela, le système, par effet tunnel quantique, franchit une barrière de potentiel qui paraît insurmontable par des moyens de physique classique parce que son énergie est inférieure à l'énergie minimale requise. La demi-vie s'exprime alors par la relation :

$$t_{1/2} = \frac{\ln 2}{fP} \quad (I-17)$$

Avec  $f$  la fréquence d'oscillation

$P$  la pénétrabilité de la barrière pour l'état fondamental

Ce processus implique une déformation du noyau provoquée par des facteurs tels que la répulsion coulombienne des protons et la tension superficielle. Lorsque le noyau atteint un certain degré de déformation, il franchit une première barrière pour atteindre un état métastable appelé isomère de fission que l'on retrouve dans la Figure I-8 à  $10^{-21}$  s. À partir de là, il peut revenir à un état moins déformé ou continuer à s'étirer jusqu'à un point de scission libérant l'énergie. Cette énergie est d'abord libérée à travers des neutrons jusqu'à ce que l'énergie d'excitation ne permette plus cette émission. Le noyau émettra alors des rayonnements  $\gamma$  jusqu'à revenir à son état fondamental. Ces deux émissions se retrouvent en compétition durant ce laps de temps. La Figure I-8 met en avant une autre particularité : la possibilité pour le noyau de se trouver dans un état isotopique radioactif entraînant l'émission d'un rayonnement  $\beta$ .

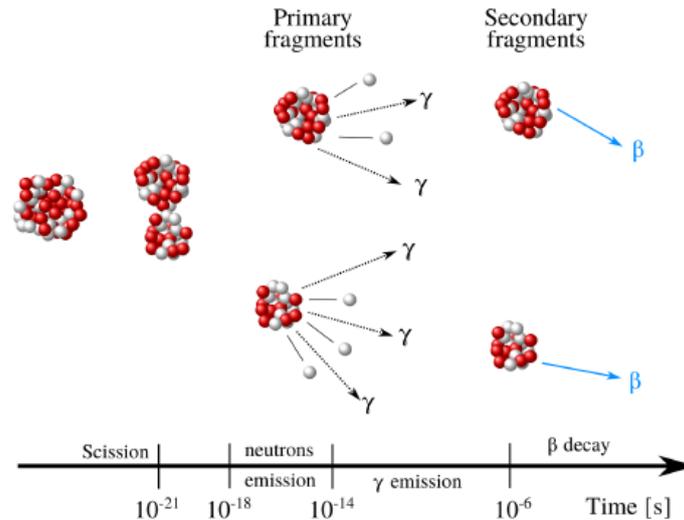


Figure I-8 : Chronologie de la fission nucléaire (FRANCHETEAU, 2023)

Prenons l'exemple de l'Uranium 238, sa demi-vie définie comme le temps que la moitié de la matière fissionne, est de  $4,46 \times 10^9$  ans (IAEA, 2015), soit une probabilité de fusion spontanée très faible. De l'autre côté, la probabilité de fission spontanée augmente considérablement pour les nucléides les plus lourds connus et devient le mode de désintégration dominant pour certains d'entre eux, ayant alors des demi-vies de quelques fractions de seconde comme  $^{262}\text{Rf}$  ayant une demi-vie de  $47 \pm 5$  ms ou son isotope le  $^{254}\text{Rf}$  à  $500 \pm 200 \mu\text{s}$  (Faw, 2002).

De façon générale, les éléments chimiques fissionnant spontanément sont les actinides synthétiques de numéro atomique élevé comme le Plutonium 239 et les transactinides de numéro atomique 100 et plus (Wagemans, 1991).

Comme son nom le suggère, la fission spontanée procède exactement à travers le même processus de désintégration radioactive que la fission nucléaire. Lorsque la masse critique est atteinte, une réaction en chaîne peut se produire permettant d'utiliser ces éléments comme source de neutrons.

### I.B.1.2 Fission induite

Ce type de fission fait aussi partie de la catégorie des interactions neutron/matière traitées dans le chapitre Absorption/Transmutation. On parle d'un type de capture appelée fission étant donné que le noyau atomique initial lourd est scindé en plusieurs nucléides plus légers. Cette réaction nucléaire permet d'obtenir deux résultats importants : une quantité de neutrons supérieure (en général deux ou trois plus élevée) et d'un dégagement d'énergie très important ( $\approx 200$  MeV par atome fissionné).

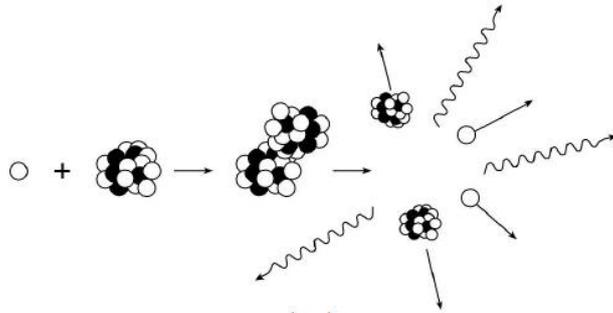
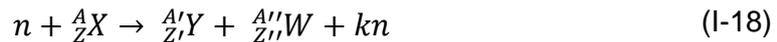
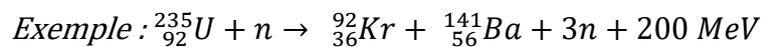


Figure I-9 : Fission induite (n,2n) (CANDU Fundamentals, 2004)



$$\text{Avec } A = A' + A'' + k - 1 \text{ et } Z = Z' + Z''$$



La fission a été découverte en 1938 par trois physiciens allemands : Otto Hahn, Fritz Strassmann et Lise Meitner (Strassmann, 1939; Elisabeth Crawford, 1997). Toute de suite après leur découverte, Lise Meitner et Otto Frisch ont compris que les neutrons produits par fission pourraient provoquer une réaction en chaîne, libérant ainsi une très grande quantité d'énergie.

Dans un réacteur, l'objectif est de maintenir la réaction en chaîne tout en minimisant la consommation de matière fissile. Les neutrons générés lors de la fission sont trop énergétiques pour déclencher efficacement la fission de l' ${}^{235}\text{U}$  avec une section efficace significative en mode thermique (580 barns par rapport à 1,95 barns en mode rapide). La Figure I-10 illustre que l'utilisation de neutrons rapides permettrait de réduire la capture. Cependant la faible section efficace de fission nécessiterait une augmentation considérable du nombre de noyaux fissiles par unité de volume pour maintenir la réaction en chaîne. Pour remédier à cela, de l'uranium est placé dans des modérateurs (comme de l'eau ou de l'hydrogène) qui, par diffusion, ralentissent les neutrons.

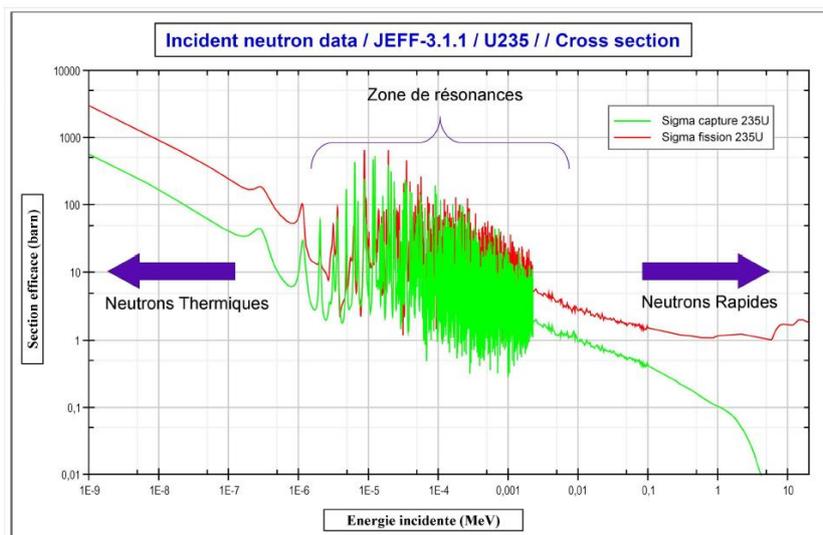


Figure I-10 : Section efficace de capture neutronique et de fission de l' ${}^{235}\text{U}$  en fonction de l'énergie du neutron incident (IAEA, 2015)

### I.B.1.3 Autres réactions

#### I.B.1.3.1 Réaction par photon ( $\gamma$ , n)

Un rayon gamma suffisamment énergétique pour vaincre l'énergie de liaison des neutrons, environ 7 MeV dans la plupart des nucléides, peut provoquer une réaction ( $\gamma$ , n). On retrouve deux sources connues : le deutérium et le béryllium 9.



Le principal avantage des sources de photoneutrons est que les neutrons émis sont quasi mono énergétiques. Cependant cela demande une très grande production de gamma, environ 1 sur un million pour la production d'un seul neutron. La probabilité qu'un photon provoque une réaction ( $\gamma$ , n) augmente avec l'énergie du photon, atteignant son maximum sur une plage d'énergie d'environ 20 à 23 MeV pour les noyaux légers ( $A \lesssim 40$ ) et de 13 à 18 MeV pour les noyaux moyens et lourds (Richard E. Faw, 2003). Généralement l'énergie maximum de la résonance est approximée à  $E_{max} = 80 * A^{-\frac{1}{3}}$  pour  $A > 40$ . Par conséquent, en médecine, où les accélérateurs produisent des photons supérieurs à 15 MeV, on peut retrouver dans l'environnement de la machine, des neutrons.

Le mécanisme photo neutronique peut être utilisé pour créer des sources de neutrons en mélangeant intimement un béryllium ou composé de deutérium avec un radio-isotope qui se désintègre avec l'émission de photons de haute énergie. Alternativement, le radio-isotope encapsulé peut être entouré d'une couche de béryllium ou de deutérium.

#### I.B.1.3.2 Réaction par alpha ( $\alpha$ , n)

De même que l'on retrouve des fissions induites par neutron ou gamma, il en existe par particule alpha  $\alpha$  incidente. Cette interaction est favorisée lorsque l'un des neutrons est faiblement lié. On retrouve ce cas avec l'isotope stable du béryllium, Be, qui possède un neutron avec une énergie de liaison de 1,7 MeV. On obtient alors la réaction (I-21) :



### I.B.1.4 Spallation

La spallation est un processus où des neutrons sont produits par l'interaction de particules (généralement des protons) à haute énergie, de l'ordre du GeV, avec un noyau cible contenant des noyaux lourds (tungstène, mercure). Les premières études de cette réaction ont été menées en 1947 au cyclotron de l'Université de Californie à Berkeley (W. M. Brobeck, 1947).

La spallation peut être envisagée comme un processus en deux étapes, comme le montre la Figure I-11. Dans la première étape, la particule primaire interagit avec les nucléons, à la fois les neutrons et les protons, à l'intérieur du noyau. Les réactions qui suivent créent une cascade intranucléaire de protons, de neutrons et de pions de haute énergie (supérieure à 20 MeV) à l'intérieur du noyau.

Pendant la cascade intranucléaire, certains de ces hadrons énergétiques, soit des particules composites comme des neutrons ou protons, s'échappent en tant que particules secondaires, tandis que d'autres déposent leur énergie cinétique dans le noyau, le laissant dans un état excité.

Dans la deuxième étape appelée désexcitation nucléaire, se produit une évaporation du noyau excité en émettant principalement des neutrons mais aussi des protons, des particules  $\alpha$ , de faible énergie. Tous ont une énergie inférieure à 20 MeV.

Les neutrons de faible énergie peuvent être, après réduction de leur énergie, utilisés comme sondes de recherche. Après l'évaporation, le noyau restant peut devenir radioactif et émettre des rayons gamma.

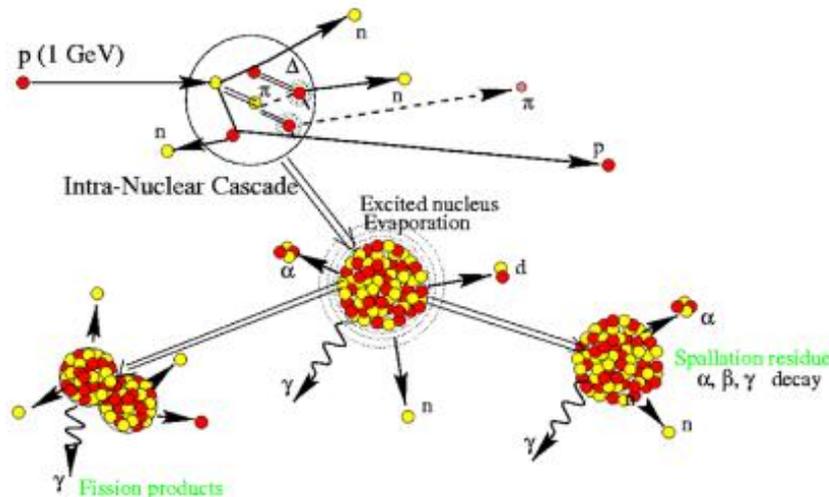


Figure I-11 : Spallation (IAEA, 2015)

Les particules secondaires de haute énergie se déplacent approximativement dans la même direction que la particule incidente et peuvent entrer en collision avec d'autres noyaux dans la cible. Les réactions qui suivent sont une série de réactions secondaires de spallation qui génèrent plus de particules secondaires et de neutrons de faible énergie. On parle alors de cascade hadronique comme étant l'accumulation de toutes les réactions provoquées par les particules primaires.

Si la cible est très lourde, comme de l'uranium appauvri ou du plomb, la fission à haute énergie peut rivaliser avec l'évaporation pendant la désexcitation nucléaire. Comme nous allons le voir dans le chapitre Spallation on retrouve encore plus d'événements de fission dans le cas de cibles fissiles tels l'uranium 235 ou l'uranium 238.

### I.B.1.5 Fusion

La fusion est, avec la fission, l'un des phénomènes nucléaires les plus connus du grand public. La fusion correspond à la réaction de deux noyaux légers fusionnant pour former un noyau plus lourd, accompagnée de la libération d'énergie sous forme de neutrons. Elle a été découverte pour la première fois par Marcus Oliphant et ses collègues en bombardant du deutérium à haute énergie sur du deutérium en 1934, découvrant également  $^3\text{H}$ , soit le tritium, et  $^3\text{He}$  dans le même travail (Oliphant M. H., 1934).

L'énergie libérée lors de la fusion nucléaire provient du fait que la masse de tout noyau est inférieure à la somme de ses protons et neutrons constitutifs. Cela est dû au fait que les protons et les neutrons dans un noyau sont liés par des énergies de liaison  $B$  qui peut être décrite comme l'énergie de travail nécessaire pour séparer un système lié. Cela s'exprime via l'équation (I-22) :

$$Mc^2 + B = \sum_{i=1}^n m_i c^2 \quad (I-22)$$

Avec  $M$  la masse du noyau lié

$m_i$  les masses des particules libres

$n$  le nombre de particules constitutives du noyau

$c$  la vitesse de la lumière ( $3 \times 10^8 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ )

Le processus de production d'énergie le plus facilement réalisable sur Terre est la combinaison d'un noyau de deutérium avec un noyau de tritium, représentée dans la Figure I-12. Les produits résultants sont une particule Alpha,  $^4\text{He}$ , et un neutron libre. Le noyau d'hélium transporte un cinquième de l'énergie totale libérée, le neutron transporte les quatre cinquièmes restants. Il s'agit de la réaction de fusion actuellement étudiée en tant que future source d'énergie qui devrait à terme remplacer les réacteurs nucléaires à fission.

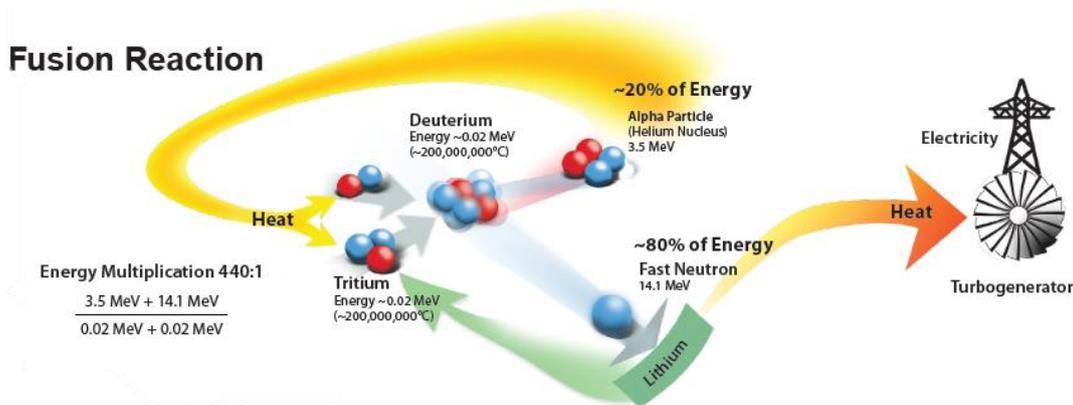


Figure I-12 : Réaction de fusion (Project)



Nous pouvons confirmer l'énergie libérée dans la réaction ci-dessus, Equation (I-23), en utilisant l'équation d'Einstein (I-22) pour l'équivalence masse-énergie. Nous pouvons d'abord écrire les unités de masse atomique pour chaque composant de la réaction, puis calculer l'équivalence énergétique :

$$3,01604927 \text{ u} + 2,014101778 \text{ u} \rightarrow 4,00260324 \text{ u} + 1,008664904 \text{ u} + E \quad (I-24)$$

$$E = (3,01604927 \text{ u} + 2,014101778 \text{ u})c^2 - (4,00260324 \text{ u} + 1,008664904 \text{ u})c^2$$

$$E = (0,018882904 \text{ u})c^2 = 17,589 \text{ MeV}$$

Cette valeur est en accord avec la valeur calculée par ordinateur de 17,589 MeV du Centre de données nucléaires nationales (US DEpartemtn of Energy, s.d.).

La réaction de fusion a lieu pour des éléments de masse atomique inférieure à 60, au-delà les éléments sont enclins à la fission comme le montre la Figure I-13. Pour une masse atomique supérieure à 60, l'énergie de liaison diminue en raison de la répulsion coulombienne des protons, tandis qu'elle diminue à gauche du fer en raison de l'augmentation du rapport surface/volume du noyau. Comme la force forte n'agit que sur les voisins les plus proches, un rapport surface/volume élevé signifie qu'il y a moins de voisins ce qui implique une moindre contribution à la force de liaison.

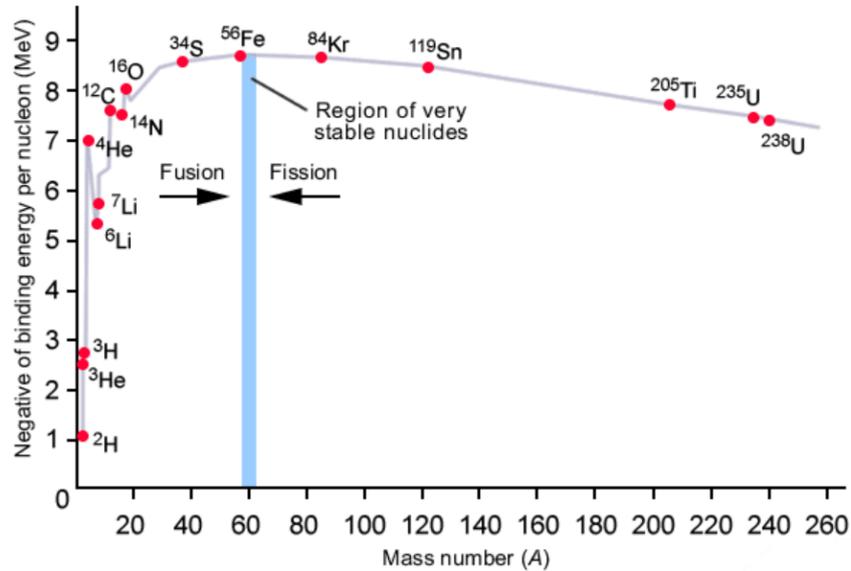


Figure I-13 : Relation entre l'énergie de liaison nucléaire d'un isotope et sa masse atomique (North Carolina School of Science and Mathematics, 2002)

I.B.1.5.1 Différences entre fission, fusion et spallation

Le Tableau I-4 présente les différentes méthodes de production neutronique. Pour la suite, nous avons exclu la fission spontanée en raison de son manque de contrôlabilité dans l'émission.

ISOTOPE	FISSION SPONTANÉE	FISSION INDUITE	FUSION	SPALLATION
ÉNERGIE PARTICULE INCIDENTE	Sans particule	< 20 MeV – 800 MeV	Minimum 4 keV	1 GeV
ÉNERGIE CINÉTIQUE NEUTRON ÉMIS	2 MeV pour le <sup>252</sup> Cf	0,7 MeV – 30 MeV	0 – 14,1 MeV	200 MeV
TEMPS ÉMISSION	Demi vie	10 <sup>-15</sup> – 55 s pour l' <sup>235</sup> U	Instantané	10 <sup>-15</sup> s
DISTRIBUTION ANGULAIRE		Émission isotrope dans le référentiel du centre de masse	4π stéradians	4π stéradians
NOMBRE NEUTRONS CRÉÉS	2 - 4	2,47 pour l' <sup>235</sup> U	1	15 - 25

Tableau I-4 : Comparatif des méthodes d'émissions neutroniques

Une distinction majeure entre ces réactions réside dans le nombre de neutrons libérés. Le nombre total de neutrons libérés par événement de fission, de l'ordre de 2,5 neutrons, est considérablement inférieur à celui libéré par événement de spallation, environ 13 (Russell, 1990). De plus, au moins l'un des 2,5 neutrons produits par la fission est nécessaire pour maintenir la réaction de fission, il est donc considéré comme inutile pour la diffusion de neutrons. En revanche, la fusion libère un seul neutron. La fission nucléaire présente une particularité temporelle liée à l'émission de neutrons. Dans le cas de la fission, des neutrons retardés peuvent être émis jusqu'à 55 secondes après la réaction. A contrario, dans les processus de fusion et de spallation, l'émission neutronique est généralement considérée comme instantanée.

Un aspect à considérer est l'énergie incidente nécessaire pour déclencher chaque réaction. La spallation requiert une énergie incidente d'environ 1 GeV, ce qui représente un défi majeur en termes de puissance nécessaire pour mettre en œuvre ce processus. En revanche, la fission peut être initiée avec des particules incidentes ayant des énergies plus basses à partir de 20 MeV. Pour la fusion, le pic de la section efficace de deutérium tritium est à 90 keV, mais une émission peut se produire à partir de 4 keV, soit l'énergie minimum pour que le neutron franchisse la barrière tunnel.

La distribution en énergie des neutrons émis diffère également. Les Figure I-14 et Figure I-15 montrent que la spallation présente une queue de neutrons plus étendue, s'étirant vers des énergies plus élevées, tendant vers l'énergie du faisceau incident de proton. En revanche, la fusion nucléaire se caractérise par un pic en énergie de 14,1 MeV pour un gaz de deutérium-tritium. L'énergie des neutrons émis lors des réactions de fusion dépend de la distribution en énergie des ions de carburant. Lorsque les réactifs sont au repos, les neutrons sont monoénergétiques. Cependant, lorsqu'ils sont en mouvement, la distribution en énergie des neutrons est affectée par des effets Doppler.

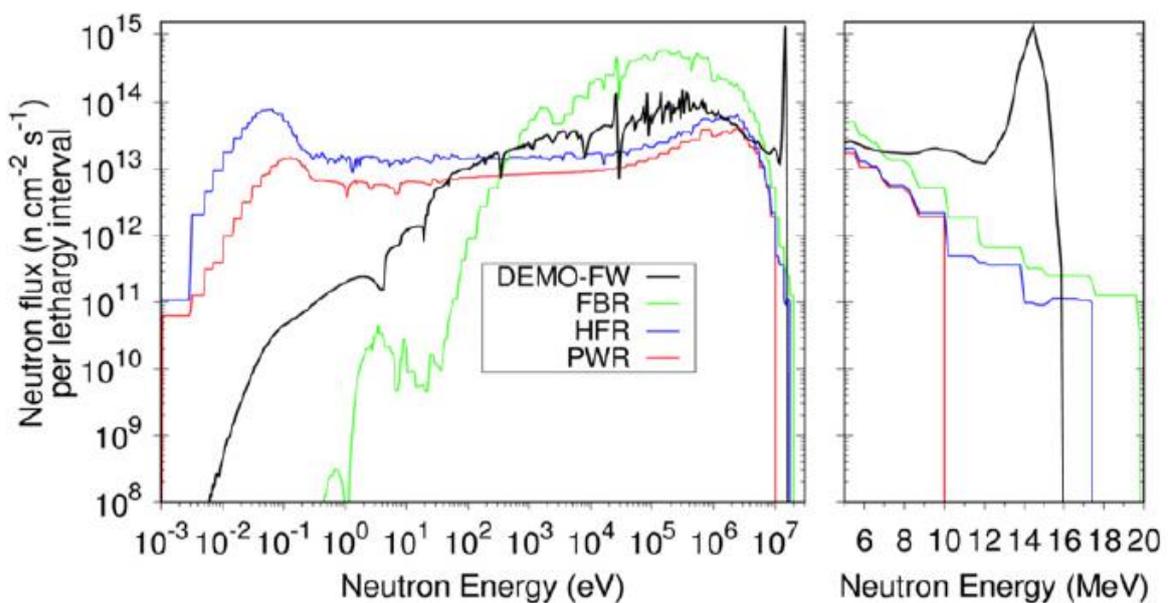


Figure I-14 : Spectre d'émission neutronique de réacteur à fusion (noir) et à fission (vert, bleu et rouge) (Jean-Christophe Sublet, 2016)

Les neutrons créés lors des réactions de spallation présentent un spectre en énergie qui s'étend jusqu'à des valeurs bien supérieures à celles observées dans des réacteurs, même de fusion. Bien que leur nombre absolu soit relativement faible en proportion du total de neutrons produits, les neutrons de haute énergie peuvent poser des défis significatifs en termes de blindage.

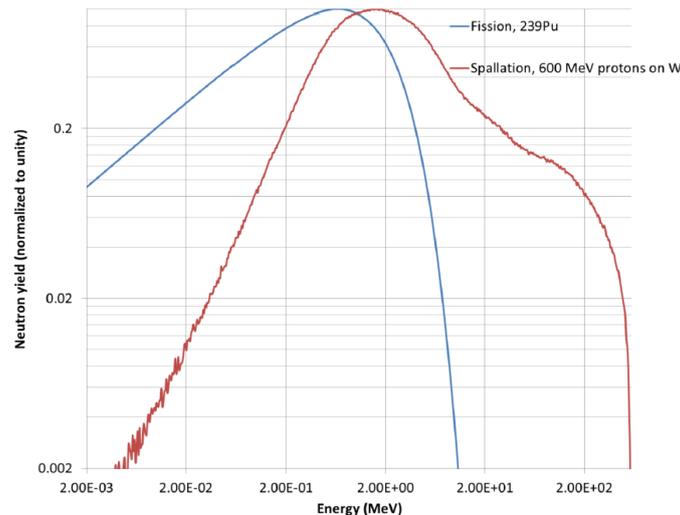


Figure I-15 : Spectre d'émission neutronique de la spallation et de la fission (Shetty, 2013)

En regroupant ces différents éléments, on peut voir que la fusion peut être utilisée à faible énergie, permettant d'avoir un faisceau monoénergétique, sans délai d'émission et isotrope ( $4\pi$  stéradians). Tous ces paramètres seront utiles pour notre application : un tube neutronique décrit dans le chapitre 2.

### I.B.2 EXEMPLES ET APPLICATIONS

Le choix du type de source (scellée ou non), du ou des radionucléides émetteurs (alpha, bêta, gamma, X ou neutron), de sa géométrie (taille, forme, etc.) et du niveau d'activité (totale, massique ou volumique) est directement lié à l'application finale recherchée.

En miroir du paragraphe I.B.1, nous avons par la suite classé les applications en fonction du mécanisme de production des neutrons.

#### I.B.2.1 Fission spontanée : source scellée (Cf 252)

Les sources de fission spontanée sont souvent des sources scellées dans des applications équivalentes à de l'imagerie neutronique. On retrouve notamment le californium 252 utilisé pour l'étude des propriétés géologiques des sous-sols via diagraphies (ASN, 2018).

Dans les cristaux contenant des proportions élevées d'uranium, les produits de fission générés par la fission spontanée créent des traces de dommages à mesure que les fragments reculent à travers la structure cristalline. Le nombre de traces, ou pistes de fission, peut être utilisé pour estimer l'âge d'un échantillon grâce à la datation par traces de fission (R.L. Fleischer, 1975).

#### I.B.2.2 Fission induite

##### I.B.2.2.1 Réacteur Nucléaire naturelle Oklo

Avant d'aborder les réacteurs nucléaires, nous pouvons aborder le cas des réacteurs nucléaires naturels, des gisements d'uranium, où des réactions en chaîne auto-entretenues se produisent. Les conditions favorables à l'existence de tels réacteurs ont été prédites en 1956 par Paul Kuroda. La confirmation de l'existence d'un réacteur nucléaire naturel a été apportée en 1972 par Francis Perrin

qui découvre des traces de ce phénomène dans de l'uranium provenant d'Oklo, au Gabon, le seul endroit connu où ce phénomène s'est produit. Les vestiges de ce réacteur, éteint depuis longtemps, ont été analysés en examinant les rapports isotopiques de l'uranium et des produits de fission, ainsi que des nucléides stables issus de ces produits de fission. À Oklo, environ 1,7 milliard d'années auparavant, pendant la période Statherienne du Paléoproterozoïque, des réactions de fission nucléaire auto-entretenues se seraient produites sur 16 sites distincts, générant une puissance thermique moyenne probablement inférieure à 100 kW au cours de cette période qui a duré quelques centaines de milliers d'années (Bodu, Bouzigues, Morin, & Pfiffelmann, 1972).

La colonne stratigraphique du bassin est identifiée comme une succession de cinq formations principales avec du grès et des conglomérats situés à 2000 m de profondeur (Weber, 1968). C'est dans cette zone qu'on retrouve les réacteurs naturels. La circulation de l'uranium dans le bassin a été induite par l'augmentation de la teneur en oxygène atmosphérique qui s'est produite à cette époque (Holland, 2009).

Dans ce contexte isotopique, l'uranium 235 a une période de décroissance plus courte que l'uranium 238, diminuant au cours du temps la teneur en uranium 235 fissile. Il est actuellement de 0,72 %, contre 3,65 % il y a deux milliards d'années.

#### I.B.2.2.2 Réacteur nucléaire

Historiquement, l'on retrouve le premier réacteur construit en 1942 à Chicago, composé de 6 T d'Uranium et 34 T d'Oxyde d'Uranium et 400 T de graphite (Fermi, 1947). Il s'agit d'une pile atomique, c'est-à-dire un empilement de graphite et d'uranium. L'équipe dirigée par Enrico Fermi retira du réacteur une barre de commande enrobée de cadmium, ce qui lança la réaction en chaîne de fission nucléaire.

La première utilisation réussie de l'énergie nucléaire pour la production d'électricité a été réalisée dans plusieurs pays dans les années 1950. Actuellement, les réacteurs nucléaires de génération II et III sont en fonctionnement dans le monde. En général, les définitions des générations de réacteurs nucléaires sont les suivantes :

- Génération I (1950–1965) : prototypes initiaux de réacteurs nucléaires ;
- Génération II (1965–95) : réacteurs commerciaux ;
- Génération III (1995–2010) : réacteurs modernes ;
- Génération III+ (2010–2025) : réacteurs avec des paramètres améliorés (améliorations de conception évolutionnaire) ;
- Génération IV (2023) : réacteurs futurs avec de nouveaux paramètres et des fonctionnalités de sécurité améliorée, un premier essai concluant a été réalisé le 6 décembre 2023 (SFEN, 2023).

Les réacteurs nucléaires peuvent être classés en fonction de divers paramètres regroupés dans le Tableau I-5. Les éléments en bleu sont ceux présents majoritairement dans les réacteurs français.

PARAMETRES	CATÉGORIES
SPECTRE DE NEUTRON	THERMIQUE RAPIDE SPECTRE INTERMÉDIAIRE OU MIXTE
CONCEPTION DU CŒUR DU RÉACTEUR	NEUTRON GÉNÉRAL
	HOMOGENE HÉTÉROGENE RÉACTEUR À CUVES SOUS PRESSIONS RÉACTEURS À CANAUX SOUS PRESSIONS RÉACTEURS À TUBES SOUS PRESSION
RÉFRIGÉRANT	EAU LÉGÈRE EAU LOURDE GAZ MÉTAL LIQUIDE SEL FONDU FLUIDES ORGANIQUES
TYPE DE MODÉRATEUR	MODÉRATEUR LIQUIDE MODÉRATEUR SOLIDE
APPLICATION	RÉACTEURS DE PUISSANCE RÉACTEURS DE RECHERCHE RÉACTEURS DE TRANSPORT OU MOBILE
NOMBRE DE CIRCUITS DE FLUIDE	CIRCUIT À ÉCOULEMENT SIMPLE CIRCUIT À ÉCOULEMENT DOUBLE CIRCUIT À ÉCOULEMENT TRIPLE.
ENRICHISSEMENT DU COMBUSTIBLE	COMBUSTIBLE À L'URANIUM NATUREL (NU) COMBUSTIBLE À L'URANIUM LÉGÈREMENT ENRICHIS (SEU) URANIUM FAIBLEMENT ENRICHIS (LEU) URANIUM FORTEMENT ENRICHIS (HEU)
COMBUSTIBLE UTILISÉ	COMBUSTIBLES NUCLÉAIRES CONVENTIONNELS COMBUSTIBLES NUCLÉAIRES ALTERNATIFS

TABLEAU I-5 : PARAMÈTRES DES RÉACTEURS NUCLÉAIRES

En France, le réacteur le plus répandu est le réacteur à eau pressurisée (REP ou PWR) avec actuellement 213 réacteurs en service sur 441 que compte le parc français. Un schéma de ce réacteur est présenté dans la Figure I-8.

Contrairement au Réacteur à Eau Bouillante (BWR), le système REP maintient l'eau de refroidissement sous pression pour éviter l'ébullition. Dans le REP, le fluide caloporteur primaire n'entraîne pas la turbine à vapeur directement. Au lieu de cela, la chaleur du système de refroidissement à eau primaire est capturée dans un échangeur de chaleur et transférée à un système secondaire. C'est l'eau de ce deuxième système qui est autorisée à bouillir et à générer de la vapeur pour entraîner la turbine. Le cœur d'un REP est rempli d'eau pressurisée à 152 bars, permettant à l'eau d'atteindre 325 °C sans bouillir. Bien que l'utilisation d'un deuxième cycle d'eau entraîne des pertes d'énergie, le rendant moins efficace pour convertir l'énergie de la réaction nucléaire en électricité, cette disposition

présente d'autres avantages en termes d'utilisation du combustible et de densité de puissance, le rendant compétitif avec le BWR et avec une conception plus compacte.

Le combustible du REP est de l'uranium enrichi à un niveau légèrement supérieur à celui d'un BWR, ce qui entraîne une densité de puissance plus élevée dans le cœur du réacteur. Comme dans le BWR, le combustible est introduit dans le cœur sous forme de pastilles d'oxyde d'uranium.

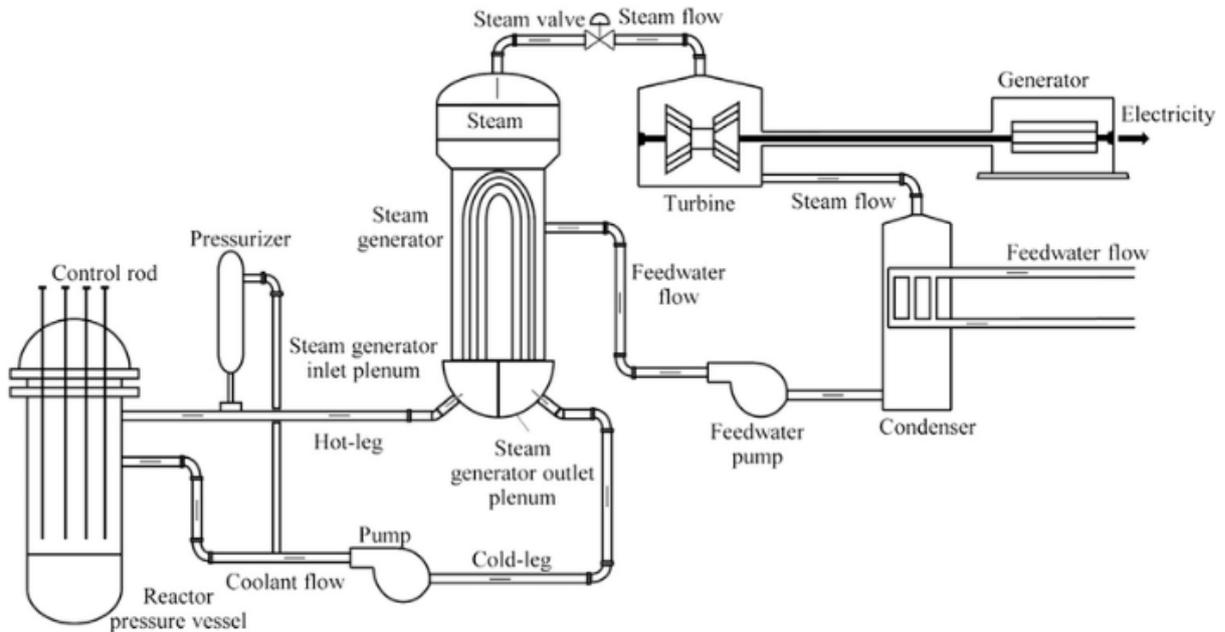


Figure I-16 : Schéma de principe d'un réacteur à eau pressurisée. (El-Sefy & Ezzeldin, 2019)

Un REP typique contiendra 100 tonnes d'uranium. Le rechargement est effectué en retirant le haut du cœur, mais, les barres de contrôle sont insérées par le haut, permettant à la gravité de jouer un rôle de sécurité en cas d'accident.

Un REP typique a une capacité de production de 1000 MW avec une efficacité d'environ 33 %. Le REP commercial le plus important a été développé par Westinghouse pour la propulsion navale, puis converti à la production d'électricité. Les Russes ont développé leur propre version du REP, appelée VVER, et des unités de ce type continuent de fonctionner en Russie et dans d'anciens pays de l'Union soviétique.

### I.B.2.3 Spallation

#### I.B.2.3.1 Neutron atmosphérique

Il existe une source de spallation naturelle : l'atmosphère terrestre. Les rayonnements cosmiques en interagissant avec les éléments de l'atmosphère, provoquent des spallations et créent une catégorie d'isotopes rares appelées nucléides cosmogéniques. On retrouve par exemple la spallation de l'Argon 40 par les rayons cosmiques en Soufre 35. Après sa formation, il est rapidement converti en dioxyde de soufre gazeux ( $^{35}\text{SO}_2$ ) (Turekian & Graustein, 2003).

Ce processus a été découvert par accident dans les années 1970 (J. A. Young, 1970) : les modèles de la nucléosynthèse du Big Bang suggéraient que la quantité de deutérium était trop importante pour être cohérente avec le taux d'expansion de l'Univers.

I.B.2.3.2 Accélérateur

La spallation est la réaction de choix pour les sources de neutrons pour les accélérateurs de recherche. La puissance des faisceaux de protons est actuellement de 10 à 200 kW et cherche à atteindre 5 MW pour les sources futures (Gardner, 1998). Un exemple emblématique de source de spallation est le Spallation Neutron Source (SNS) du Oak Ridge National Laboratory aux États-Unis. Le SNS est alimenté par un puissant accélérateur de particules linéaires, produisant des faisceaux de protons à haute énergie pour interagir avec une cible à spallation, générant ainsi un flux intensif de neutrons. Il détient actuellement le record de puissance avec un faisceau atteignant 1,7 MW (Oak Ridge National Laboratory, 2023).

On retrouve les caractéristiques des principales installations de recherche utilisant la spallation dans le *Tableau I-6*.

	IPNS (USA)	KENS (JAPON)	MLNSCE (LOS ALAMOS USA)	ISIS (UK)	SINQ (SUISSE)	ESS (EUROPE/SUÈDE)
<b>ACCÉLÉRATEUR</b>	50 MeV LINAC & synchrotron	40 MeV LINAC & synchrotron	800 MeV LINAC & anneaux de stockage	70 MeV LINAC & synchrotron	72 MeV cyclotron & cyclotron	90 MeV LINAC & radiofréquence
<b>ENERGIE DES PROTONS (MEV)</b>	450	500	800	800	590	2000
<b>COURANT DE FAISCEAUX (µA)</b>	15	4.6	70	200	1500	2500
<b>TAUX DE RÉPÉTITION (HZ)</b>	30	20	20	50	Continu	14
<b>PUISSANCE DU FAISCEAU (KW)</b>	6,8	2,3	56	160	885	75
<b>CIBLE</b>	<sup>238</sup> U	Tantale	Tungstène	Tantale	Zircaloy (alliage de Zirconium)	Tungstène

Tableau I-6 : Paramètres de source de spallation

I.B.2.3.3 Source scellée

Les sources scellées, telles que l'Américium-Béryllium (AmBe) ou le Radium-Béryllium (RaBe), sont utilisées pour générer des neutrons par fusion dans des dispositifs portables. Est définie comme source scellée, les sources dont la structure ou le conditionnement empêche, en utilisation normale, toute dispersion de substances radioactives dans le milieu ambiant. À moins qu'elles ne fuient ou ne soient brisées, les sources scellées n'induisent qu'un risque d'exposition externe. C'est pourquoi elles sont couramment utilisées et plus facilement manipulables

L'idée de ces sources est de jumeler une réaction connue, comme avec la réaction (I-21) du Béryllium, avec un émetteur alpha. Pour avoir une source qualitative, l'émetteur alpha et la source neutronique

doivent être en contact direct, par exemple sous forme de poudre de béryllium métallique avec un oxyde d'émetteur alpha. Ce mélange est ensuite comprimé en cylindre pour être encapsulé. Une autre approche consiste à employer un alliage métallique des deux composants.

Elle est ensuite encapsulée une seconde fois dans un acier inoxydable avec des embouts TIG soudés. Un jeu est laissé à l'intérieur pour permettre l'accumulation progressive d'hélium qui résulte des émissions alpha. Les émetteurs alpha couramment utilisés sont :

- Américium 241, le plus communément utilisé ;
- Plutonium 238 ;
- Plutonium 239 ;
- Polonium 210 ;
- Radium 226.

De même, le Béryllium peut être remplacé par d'autres éléments comme le Fluorine et le Lithium qui ont des énergies neutroniques plus faibles, respectivement 1,5 et 0,5 MeV.

Les sources scellées sont utilisées dans plusieurs domaines d'application. On retrouve notamment la source d'étalonnage. Ce sont des sources radioactives dont l'activité est mesurée de façon maîtrisée, garantissant la traçabilité au Système international (SI) des unités. L'activité de ces sources est déterminée conformément à un référentiel normatif spécifique (norme ISO/IEC 17025 :2017).

#### I.B.2.4 Fusion

##### I.B.2.4.1 Fusion naturelle

De façon naturelle, la majeure partie de la puissance du Soleil vient d'une réaction de fusion proton-proton (pp). Il s'agit d'un processus en trois étapes représentées dans la Figure I-17, chaque étape libérant plus d'énergie que la précédente. Tout d'abord, deux protons fusionnent pour former un deutéron, un noyau de deutérium. Lorsque les protons fusionnent, l'un d'entre eux subit une décroissance  $\beta^+$ , se transformant en neutron en émettant un positron et un neutrino électronique. Le deutéron fusionne avec un autre proton pour produire un noyau d'hélium. Chaque noyau d'hélium produit dans ces réactions n'existe que pendant environ 400 ans avant de se convertir en hélium 4. Une fois que l'hélium 3 a été produit, il existe quatre chemins possibles pour générer du  $^4\text{He}$  dont la plus commune est représenté dans la Figure I-17. Le rendement énergétique total de toute la chaîne est de 26,73 MeV.

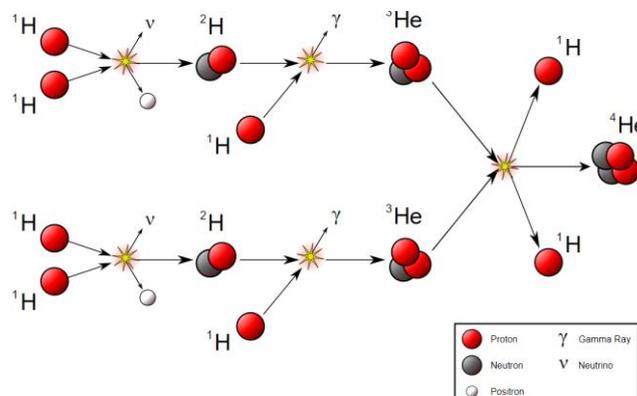


Figure I-17 : Chaîne de réaction proton-proton (wikipedia, 2016)

L'énergie libérée sous forme de rayons gamma interagit avec les électrons et les protons, chauffant l'intérieur du Soleil. De plus, l'énergie cinétique des produits de fusion ajoute de l'énergie au plasma dans le Soleil.

### I.B.2.4.2 Fusion artificielle

Afin d'atteindre une réaction de fusion, le plasma doit être de l'ordre de 20 000 eV, soit plus de  $2 \times 10^8$  K. On se retrouve alors face à deux approches :

- Le confinement magnétique qui utilise des aimants puissants pour confiner le plasma pendant des durées très longues ;
- Le confinement inertiel qui utilise des lasers puissants mais brefs.

#### I.B.2.4.2.1 Confinement magnétique

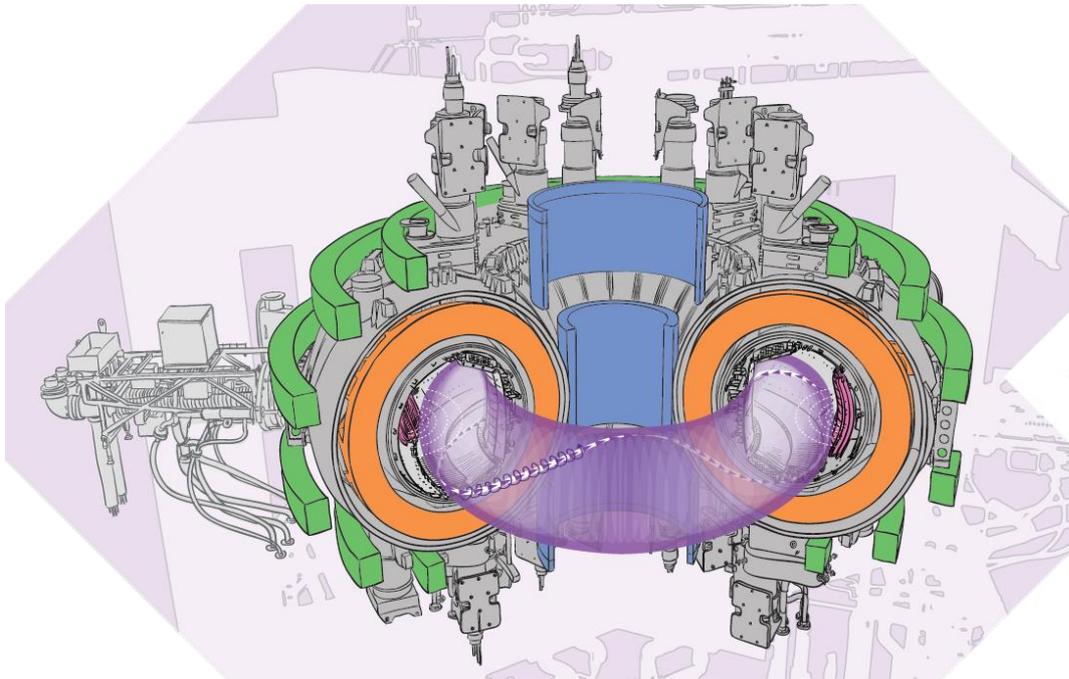


Figure I-18 : Schéma du Tokamak West du CEA (CEA, 2018)

Lorsque l'on évoque le confinement magnétique, le tokamak est le réacteur de fusion de référence, illustré dans la Figure I-11. Il se caractérise par une vaste enceinte en forme de tore dans laquelle le plasma est confiné. L'objectif est de chauffer et de contrôler le plasma tout en limitant ses interactions avec la paroi. Pour ce faire, le tokamak dispose de plusieurs méthodes de chauffage du plasma :

- La bobine magnétique centrale, représentée en bleu, induit un courant dans le plasma, le chauffant par effet Joule ;
- L'injection de deutérium accéléré, qui entre en collision avec les particules du plasma ;
- Les bobines magnétiques poloïdales (en vert) et toroïdales (en orange) émettent une onde électromagnétique agissant sur le plasma.

Le confinement radial est assuré par des solénoïdes et des bobines électriques qui génèrent un champ magnétique radial. Ce champ contraint les particules à se déplacer le long des lignes magnétiques, évitant ainsi leur fuite.

Le confinement en tore introduit des défis supplémentaires car le champ magnétique n'est pas uniforme. Cela induit des phénomènes tels que l'aplatissement du plasma le long du petit rayon du tore et la force centrifuge, qui pousse les particules vers l'extérieur. Pour contrecarrer ces effets, un

confinement poloïdal est appliqué qui induit une torsion du plasma pour obliger les particules à boucler au même endroit après un tour. Cette torsion peut être réalisée mécaniquement dans un Stellarator ou magnétiquement dans un tokamak. Dans ce dernier, un champ poloïdal est créé par un courant alternatif circulant le long du tore, assurant ainsi un confinement efficace du plasma.

#### I.B.2.4.2.2 Confinement Inertiel

Des capsules sphériques contenant des pastilles de combustibles sont chauffées et comprimées par des lasers de haute puissance. La chaleur à la surface de la capsule provoque une micro-implosion du combustible, qui entraîne à son tour l'ablation et l'explosion de la couche superficielle de la pastille. L'inertie créée par ce processus maintient le combustible confiné suffisamment longtemps pour permettre des réactions de fusion.

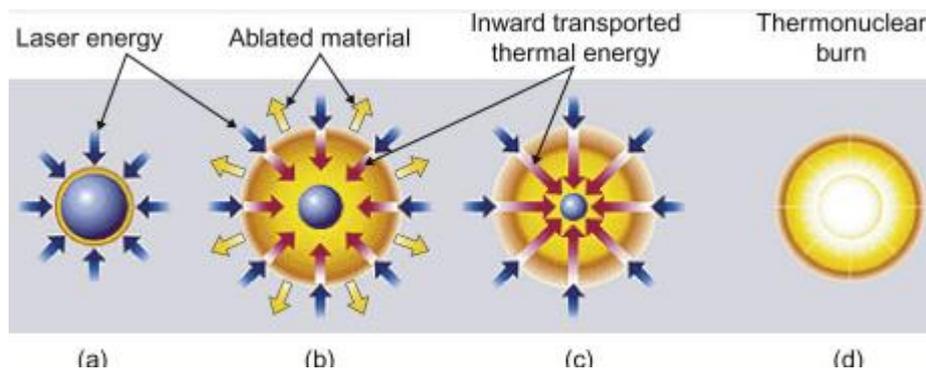


Figure I-19 : Les quatre étapes du confinement inertiel : chauffage laser de la couche externe (a), ablation de la couche externe et compression de la capsule (b), le noyau atteint une densité et une température suffisante pour l'inflammation (c), propagation de la réaction de fusion (d) (Stott, 2012)

Cette approche est actuellement en état de prototypage dans différents pays : aux USA, avec le National Ignition Facility, et en France, avec le Laser Mégajoule. Ce dernier est le projet de confinement inertiel le plus énergétique au monde avec un objectif de 1,8 MJ sur la cible. Actuellement composé de 80 faisceaux, il en sera à terme doté de 176 avec des impulsions laser de 20 ns d'une longueur d'onde de 351 nm (proche de l'ultraviolet). Le but est de maximiser l'énergie déposée par le laser dans la cible. Cette dernière est un mélange de 40% de deutérium et 60% de tritium pesant 1mg. Elle est placée dans une cavité métallique permettant d'homogénéiser la chaleur.

En 2022 et 2023 (Wang, 2023), le NIF (National Ignition Facility) du Laboratoire national Lawrence Livermore en Californie a produit huit fois plus d'énergie grâce à la fusion inertielle que lors de précédentes expériences en atteignant le seuil d'ignition, soit le moment où l'on récupère autant d'énergie thermonucléaire que ce que l'énergie laser a fourni.

#### I.B.2.4.2.3 Sources scellées électriques

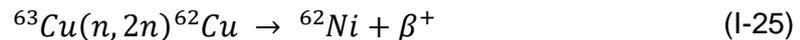
Après avoir examiné les deux principaux types de confinement pour la fusion, à savoir le confinement inertiel et magnétique, il est opportun de se tourner vers des dispositifs beaucoup plus compacts, de l'ordre du mètre. Ces dispositifs, connus sous le nom de sources scellées neutroniques électriques seront longuement détaillés dans le chapitre 2 qui leur est consacré.

#### I.B.2.5 Activation

L'activation est le processus par lequel l'exposition à un rayonnement neutronique induit de la radioactivité dans les matériaux. Cela se produit par l'interaction de capture radiative ou de capture aboutissant à des éléments différents. Ainsi, le processus de capture de neutrons, même après toute

désintégration intermédiaire, aboutit souvent à la formation d'un produit d'activation instable. Ces noyaux radioactifs peuvent avoir des demi-vies allant de fractions de seconde à de nombreuses années. L'activation est alors utilisée pour cette propriété : transformer un matériau stable en radioactif.

Elle est utilisée pour mesurer le débit d'émission d'une source neutronique, impliquant l'exposition d'une pastille de cuivre aux neutrons, provoquant une activation et la transformation du  $^{63}\text{Cu}$  en une forme instable ( $^{62}\text{Cu}$ ). Ce cuivre, lors de sa désexcitation, émet une particule  $\beta^+$  (équation (I-25)). L'interaction ultérieure du positron avec un électron génère, par annihilation, deux photons  $\gamma$  de 511 keV, émis à  $180^\circ$  l'un de l'autre.



Le nombre de photons gamma générés est donc dépendant du nombre de neutrons émis pendant la période d'activation. Après étalonnage, le comptage des photons permet de déduire le débit d'émission neutronique de la source.

Dans le chapitre I. Le Neutron, nous avons exploré les multiples interactions des neutrons ainsi que les divers mécanismes de génération de ces particules. Après ces prérequis, nous aborderons dans le chapitre 2 une application spécifique : les sources neutroniques scellées à commande électrique. Ces dispositifs compacts exploitent le principe de fusion nucléaire pour générer des neutrons. Cette réaction nucléaire offre la possibilité de produire des neutrons monoénergétiques, contrôlables tant sur le plan temporel qu'en quantité.

Tout d'abord, nous examinerons les principes fondamentaux qui guident leur fonctionnement en mettant en lumière leur architecture et les différentes applications. Nous allons ensuite explorer les composants clés de ces sources en expliquant leur utilité et la physique qui en découle. Pour poursuivre nous allons voir sur les limitations et les défis associés à l'utilisation de ces dispositifs, en les comparant à d'autres sources neutroniques. En comprenant mieux les contraintes auxquelles nous sommes confrontés, nous serons mieux préparés à envisager des solutions, telles que celles présentées dans le chapitre 3.



## II. SOURCE NEUTRONIQUE ÉLECTRIQUE

---

### A. GÉNÉRALITÉS

Les sources neutroniques scellées, appelées aussi tubes neutroniques car très souvent de forme cylindrique, sont des dispositifs produisant des neutrons en fusionnant des isotopes d'hydrogène. Ces réactions de fusion se produisent en accélérant du deutérium, du tritium ou un mélange de ces deux isotopes vers une cible de métal hydruré contenant également ces mêmes isotopes. Cela conduit à la formation d'un ion hélium-3 et d'un neutron avec une énergie cinétique d'environ 2,5 ou d'une particule alpha et d'un neutron de 14,1 MeV comme vu dans le chapitre précédent.

Le concept fondamental a été développé pour la première fois par l'équipe d'Ernest Rutherford au Cavendish Laboratory au début des années 1930 (Oliphant M. H., 1934). Grâce à un accélérateur linéaire alimenté par un générateur Cockcroft–Walton, Mark Oliphant a dirigé une expérience qui a projeté des ions de deutérium dans une feuille de métal imprégnée de deutérium et a observé qu'un petit nombre de ces particules émettaient des particules alpha (Oliphant M. H., 1934). Cela a constitué la première démonstration de fusion nucléaire, ainsi que la première découverte de l'hélium-3 et du tritium créé lors de ces réactions (voir les(II-2) à (II-4)). L'évolution de ces sources a conduit à une réduction constante de la taille de ces machines, passant de celles d'Oliphant qui remplissaient un coin du laboratoire à des machines modernes hautement portables et miniaturisées à l'extrême jusqu'à des dimensions caractéristiques de quelques centimètres seulement (Dodson, 2012).

#### II.A.1 PRINCIPE DE FONCTIONNEMENT

De manière exhaustive, nous allons examiner le processus de fusion afin de comprendre quels éléments sont indispensables à la création de ces neutrons. Pour cela, nous avons besoin de deux particules ayant des énergies cinétiques suffisantes pour surmonter leur barrière de potentiel électrostatique et donc fusionner.

Les réactions les plus exothermiques, comme celle se produisant au cœur des étoiles, impliquent des noyaux légers car ayant un défaut de masse plus significatif. La réaction de fusion de quatre noyaux de protium  ${}^1_1\text{H}$  en un noyau d'hélium  ${}^4_2\text{He}$  du Soleil produit 25 MeV d'énergie. Malheureusement, cette réaction nécessite des températures et des pressions de l'ordre de  $10^7$  K, ce qui la rend irréalisable sur Terre.

Les réactions de fusion suivantes les plus courantes sont donc celles impliquant des isotopes de l'hydrogène : le deutérium  ${}^2_1\text{D}$  et le tritium  ${}^3_1\text{T}$ . Chacune de ces réactions est nommée en fonction des réactifs : on retrouve les fusion DD (équation (II-1)(II-2)(II-3)), la réaction DT (II-4) et la réaction TT (II-5).

Equation de la réaction	Energie totale Q	Probabilité	
${}^2_1\text{D} + {}^2_1\text{D} \rightarrow {}^1_0\text{n} (2,45 \text{ MeV}) + {}^3_2\text{He}(0,82 \text{ MeV})$	3,27 MeV	50 %	(II-1) (Justin, 2019)

Equation de la réaction	Energie totale Q	Probabilité	
${}^2_1\text{D} + {}^2_1\text{D} \rightarrow {}^0_0\gamma (23,77 \text{ MeV}) + {}^4_2\text{He} (0,08 \text{ MeV})$	23,85 MeV	<0.01 %	(II-2) (Robouch, 1993)
${}^2_1\text{D} + {}^2_1\text{D} \rightarrow {}^1_1\text{p} (3,02 \text{ MeV}) + {}^3_1\text{T} (1,01 \text{ MeV})$	4,03 MeV	50 %	(II-3)
${}^2_1\text{D} + {}^3_1\text{T} \rightarrow {}^1_0\text{n} (14,07 \text{ MeV}) + {}^4_2\text{He} (3,52 \text{ MeV})$	17,59 MeV	100 %	(II-4)
${}^3_1\text{T} + {}^3_1\text{T} \rightarrow 2 {}^1_0\text{n} (7,55, \text{MeV}) + {}^4_2\text{He} (3,78, \text{MeV})$	11,33 MeV	100%	(II-5) (Hameed, 2018)

Parmi les trois réactions conduisant à la production de neutrons, la réaction TT ne permet pas d'obtenir un faisceau monoénergétique. La plage d'énergie des neutrons est plus étendue, ce qui entraîne une intensité relative plus faible comme le montre la Figure II-1. Les réactions qui nous intéressent le plus sont les réactions de DD et DT. Toutes deux sont exothermiques, nécessitant ainsi des faisceaux de particules à énergie relativement basse (10 à 500 keV) (IAEA R. T., 2012). La réaction DT présente une résonance à environ 100 keV avec une section efficace de 5 barns, tandis que la réaction DD présente une résonance plus faible à environ 2 MeV (environ 0,1 barn).

Toutes deux ont des sections efficaces raisonnables à basses énergies. Toutefois la section efficace de la réaction DT est beaucoup plus élevée que celle de la réaction DD (équation (II-1)) ce qui se traduit par un rendement d'environ deux ordres de grandeur plus élevés autour de 100 keV pour la réaction DT. En raison de leur fluence plus élevée, principalement des générateurs de neutrons DT ont été fabriqués au cours des dernières décennies (IAEA R. T., 2012).

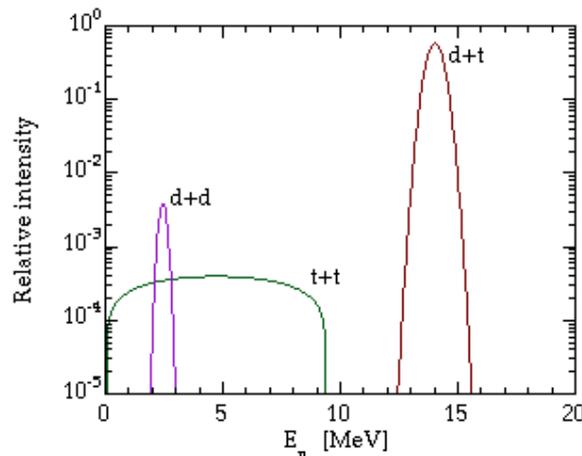


Figure II-1 : Spectres d'énergie des neutrons de fusion pour différentes réactions impliquant soit du deutérium *d*, soit du tritium *t* : *d+d*, *d+t* et *t+t* (Hahto)

A partir de cette réaction de fusion DT, on identifie deux éléments : une cible et des particules accélérées porteuses de l'énergie nécessaire à la fusion. Dans un tube à neutrons scellé, la cible est généralement solide avec un hydrure métallique contenant à la fois des atomes de deutérium et de tritium ; et les particules chargées sont un faisceau d'ions accélérés par un champ électrique. On retrouve ces différents éléments dans la Figure II-2.

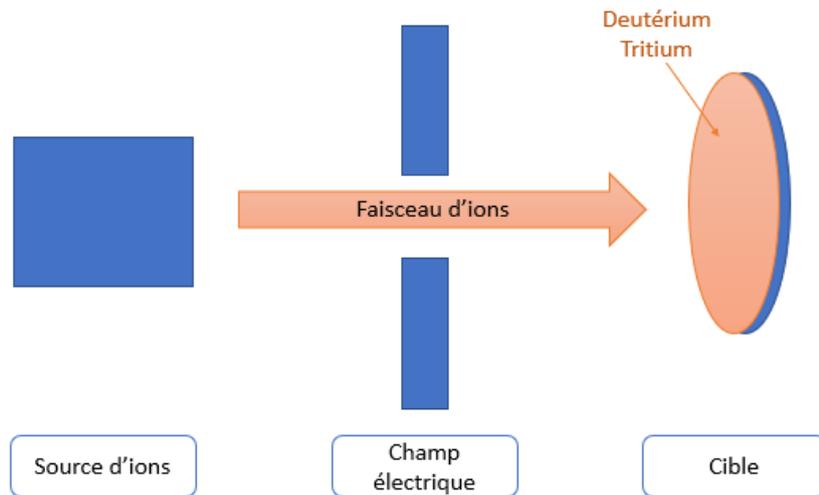


Figure II-2 : Diagramme d'un tube à neutrons scellé

### II.A.2 PARAMÈTRE D'ÉVALUATION

#### II.A.2.1 Faisceau d'ions

Dans un tube neutronique scellé, le deutérium et le tritium se trouvent à la fois sur la cible et dans le faisceau d'ions, multipliant les possibilités d'interactions. On détermine alors, pour chaque interaction, DD DT et TT, leur probabilité en se basant sur trois paramètres :

- La quantité d'ions dans le faisceau, soit le courant émis de la source d'ions  $I_{SI}$  exprimé en mA ;
- La quantité d'atome sur la cible ;
- La section efficace de l'interaction.

En se plaçant dans la région d'énergie cinétique de 10 à 100 keV, nous nous apercevons que la section efficace DT est prédominante par rapport à celle de DD ou TT. Ainsi, dans un tube DT, même si les réactions DD et TT sont possibles, les neutrons sont principalement générés par la fusion DT ce qui va nous permettre d'émettre des neutrons de 14 MeV.

L'évaluation de l'intensité du faisceau soulève diverses considérations. L'intensité du faisceau est souvent conceptualisée en termes de courant électrique. Pour les faisceaux de haute intensité destinés aux accélérateurs de particules, on parle d'ordres de grandeur autour de 100 mA, équivalant à environ  $6 \times 10^{17}$  charges unitaires par seconde. Les ions à charge multiple présentent moins d'ions pour le même courant électrique et parfois des particules par Ampère (particule·A) sont utilisées, où le courant électrique est divisé par l'état de charge. Lors de l'injection dans un synchrotron, il est crucial de reconnaître que le faisceau n'est utile que pendant une fraction du cycle du synchrotron. De plus, l'émittance du faisceau, initialement déterminée à la source d'ions, revêt une importance critique pour certaines applications. La valeur minimale de l'émittance de la source est limitée par l'ouverture et la température ionique dans le plasma.

#### II.A.2.2 Utilisation en mode pulsé

Les neutrons peuvent être émis en continu ou bien de manière intermittente que l'on caractérise par des périodes d'émission en alternance avec des périodes de repos. Les neutrons sont générés pendant

de courts intervalles, qui durent généralement de quelques microsecondes à plusieurs dizaines de microsecondes, suivis d'une autre phase sans émission, qui est généralement plus longue que la phase d'émission. La période de repos est notamment exploitée pour recueillir les signaux de réponse dans le contexte des applications de diagraphie abordées dans la partie Analyse de matière.

L'impulsion neutronique est généralement obtenue en appliquant une très haute tension continue à la cible, notée  $U_T(t)$ , tandis que la création d'ions est pulsée par la haute tension appliquée à la source d'ions,  $U_S(t)$ . En conséquence, le courant de décharge ionique, représenté par  $I_S(t)$ , est pulsé, entraînant également une émission pulsée de neutrons par le tube, caractérisée par le courant d'émission  $I_T(t)$  et la quantité de neutrons émis  $Q_n(t)$ .

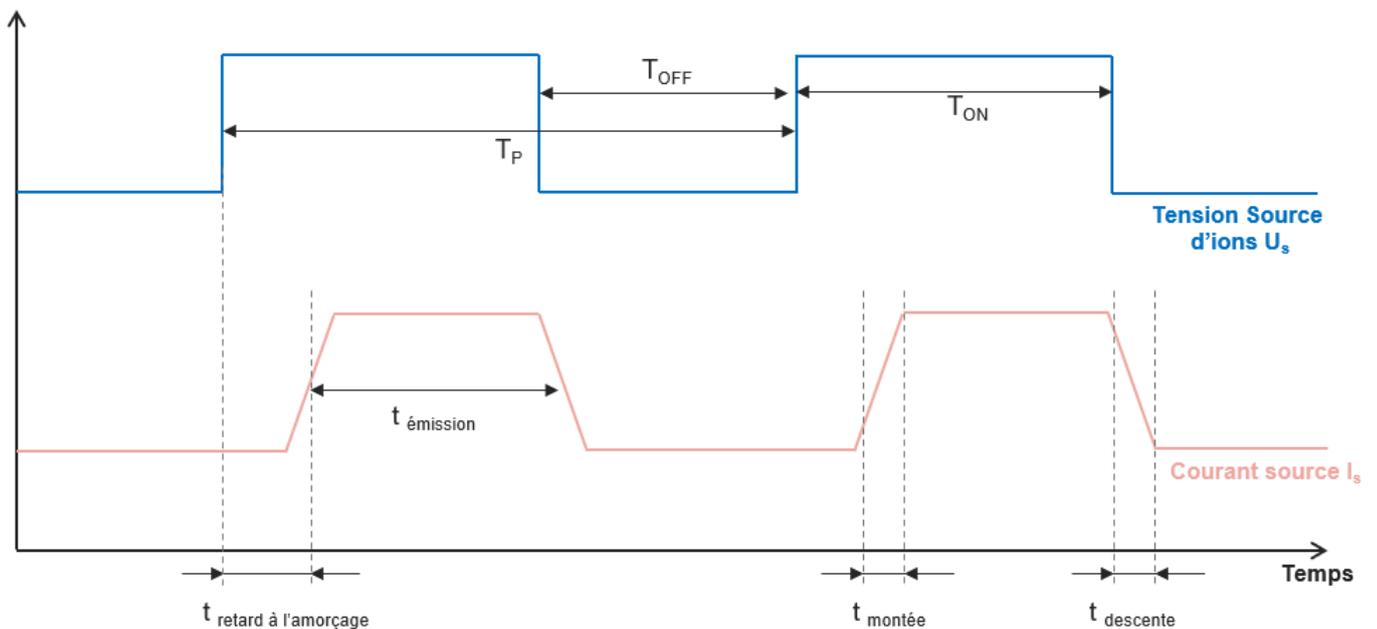


Figure II-3 : Schéma générale de pulse d'un tube neutronique

Cette émission pulsée de neutrons est définie par plusieurs paramètres temporels, qui sont détaillés dans la Figure II-3 et listée ci-dessous :

- La fréquence d'impulsion  $f_P = \frac{1}{T_P} = T_{ON} + T_{OFF}$  ;
- La durée de mise sous tension  $T_{ON}$  et d'arrêt  $T_{OFF}$  ;
- Le cycle électrique  $\tau_{El} = T_{ON}/T_P$  ;
- Le cycle ionique  $\tau_P = (T_{ON} - t_{retard})/T_P$  ;
- La largeur d'impulsion  $t_{émission}$  qui est définie comme la largeur totale à mi-hauteur de l'impulsion ;
- Le temps de retard à l'amorçage  $t_{retard}$ , c'est-à-dire le temps entre la mise sous tension de la source et l'impulsion du courant de décharge de la source d'ions ;
- Le temps de montée  $t_{montée}$  et de descente  $t_{descente}$  du pulse correspondant à la pente entre 10% et 90% de l'amplitude maximale de l'impulsion.

En connaissant tous les paramètres temporels, nous pouvons introduire tous les paramètres électriques impliqués dans le fonctionnement d'un tube à neutrons. Tout d'abord, nous considérons

## II. Source neutronique électrique

les valeurs moyennes des signaux car ce sont elles qui sont utilisées pour définir les points de fonctionnement. La valeur moyenne est calculée en prenant la valeur maximale multiplié par le cycle ionique  $\tau_p$ . Les valeurs d'intérêt pour la caractérisation d'un tube neutroniques sont :

- Le courant ionique émis de la source d'ions  $I_{SI}$  exprimé en mA ;
- Le courant tube  $I_T$  exprimé en  $\mu A$  ;
- La tension Cible  $U_T$  exprimé en kV ;
- Le rendement neutronique  $Q_n$  exprimé en neutrons par seconde  $n \cdot s^{-1}$ .

Comme nous le verrons par la suite d'autres paramètres influent sur les caractéristiques du tube, telles que la quantité d'hydrogène représentée par la pression interne du tube ou encore la température externe à celui-ci.

### II.A.3 ARCHITECTURE GLOBALE

En se référant au diagramme de la Figure II-4, nous pouvons identifier les différents éléments nécessaires à l'émission neutronique. On retrouve :

- Une source de deutérium tritium, le réservoir, qui émettra l'hydrogène sous forme gazeuse ;
- Un espace d'ionisation où les ions nécessaires à la fusion sont créés ;
- Un espace d'extraction des ions souvent couplé à l'espace d'accélération ;
- Un espace où aura lieu la fusion, la cible.

Le tout est contenu dans une enveloppe hermétique et isolante.

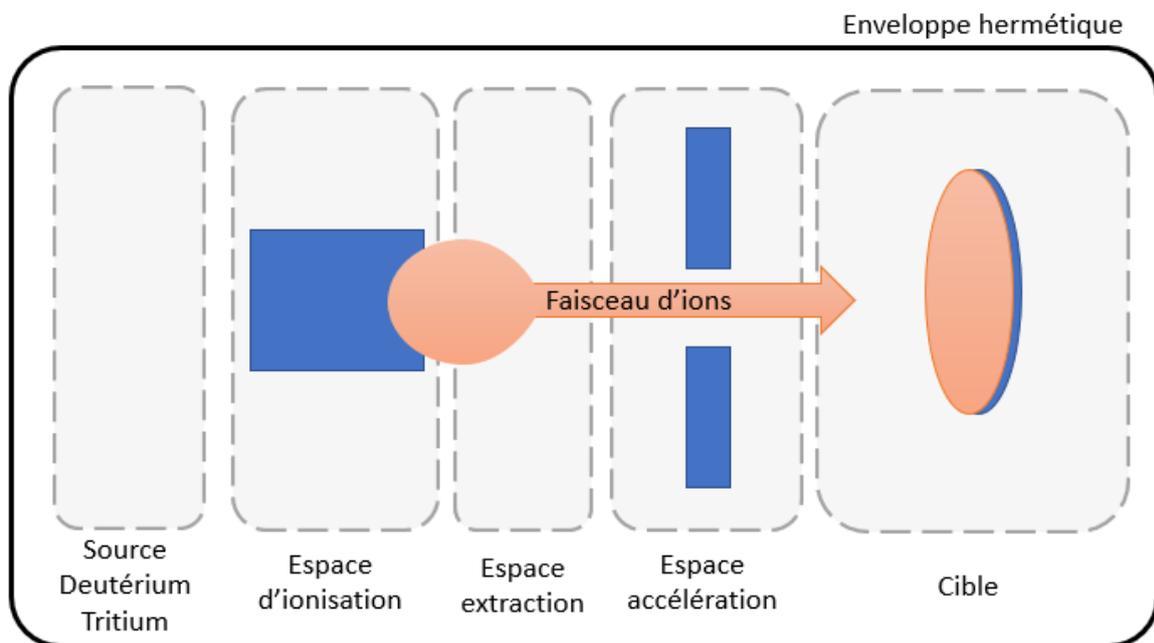


Figure II-4 : Schéma générale de pulse d'un tube neutronique

Dans la partie dédiée aux Composants, nous examinerons de près la composition, la physique et l'architecture de chacune de ces parties.

#### II.A.4 APPLICATIONS

De façon générale, l'une des applications majeures de l'utilisation de ces tubes neutroniques scellés est l'utilisation des neutrons comme analyseur de matière. Elle repose sur des propriétés nucléaires plutôt que sur des propriétés atomiques ou moléculaires. Ceci évite le problème de l'état chimique dans lequel se trouve l'échantillon qui est une source d'incertitude dans les méthodes analytiques traditionnelles. De plus, il s'agit d'une méthode d'analyse non intrusive et non destructive.

La petite taille et la transportabilité de ces tubes les rendent également applicables aux mesures sur le terrain et à la mise en œuvre dans les laboratoires sur site où les instruments analytiques conventionnels sont peu susceptibles d'être utilisables.

##### II.A.4.1 Analyse de matière

Dans les années 1960, beaucoup d'activités étaient en cours dans le développement et l'application de l'analyse par activation neutronique (NAA) en général, et particulièrement dans l'utilisation de la NAA basée sur les générateurs de neutrons (Corte, 1972; CS Munita, 2019; LAUL, 1979). En 1973, Sam S. Nargolwalla et Edwin P. Przybylowicz ont publié un livre intitulé « Activation Analysis with Neutron Generators ». Cet ouvrage est devenu une référence pour la pratique et l'analyse par activation des matériaux. Il met en avant l'intérêt de l'utilisation des générateurs de neutrons pour l'analyse de l'oxygène.

L'une des applications les plus significatives de cette technique réside dans la détermination de l'oxygène en utilisant la réaction  $^{16}\text{O}(n, p)^{16}\text{N}$ , cette dernière avait déjà été mise en avant par Nargolwalla et Przybylowicz (Nargolwalla & Przybylowicz, 1973). Dans ce processus, l'azote se désintègre avec une demi-vie de 7,13 secondes libérant des photons gamma de 6,13 MeV et 7,12 MeV. Il est important de noter que la valeur seuil pour déclencher la réaction (n, p) est de 9,6 MeV, d'où l'utilisation de neutrons de 14 MeV. Les effets d'auto-absorption sont également réduits, de sorte que des matrices très variées peuvent être étudiées avec souvent une variation insignifiante de l'atténuation des rayons gamma.

En plus de l'oxygène, plusieurs autres composants présents à des niveaux majeurs (en pourcentage) et mineurs (en dixième de pourcentage) sont mesurés. Les éléments couramment déterminés en utilisant des réactions induites par les neutrons rapides comprennent notamment le silicium ( $^{28}\text{Si}(n, p)^{28}\text{Al}$ ), l'azote ( $^{14}\text{N}(n, 2n)^{13}\text{N}$ ), l'aluminium ( $^{27}\text{Al}(n, p)^{27}\text{Mg}$ ), le fluor ( $^{19}\text{F}(n, 2n)^{18}\text{F}$ ), le phosphore ( $^{31}\text{P}(n, 2n)^{30}\text{P}$ ) et peut-être le fer ( $^{56}\text{Fe}(n, p)^{56}\text{Mn}$ ).

La longévité de la technique est due, au moins en partie, au fait qu'aucune méthode concurrente n'a été développée et qu'elle est automatisable. Les analyses géochimiques, y compris les mesures de composition du charbon et des produits du charbon, ont historiquement rapporté la concentration en oxygène par différence (en soustrayant les concentrations de tous les autres éléments majeurs de 100 %) ou par stœchiométrie. Les méthodes de combustion sont généralement moins sensibles et beaucoup plus longues.

### II.A.4.1.1 Analyseur en ligne

La technologie d'analyse en ligne la plus utilisée est l'activation thermique/neutronique à pulsations rapides (PFTNA) ; parfois appelée analyseur neutronique continu. Celui-ci est constitué d'une source neutronique, d'un modérateur (comme du polyéthylène), d'un convoyeur qui transporte la matière et de détecteurs (généralement des scintillateurs) au-dessus. Un grand boîtier abrite l'instrument, qui sert de blindage contre les radiations comme le montre la Figure II-5. Les spectres obtenus sont comparés à ceux de matériaux purs ( $\text{SiO}_2$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{CaCO}_3$  et  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ ) et la composition est déterminée à partir de la combinaison linéaire des spectres de la bibliothèque (IAEA R. T., 2012).



Figure II-5 : Analyseur en ligne Ciment (Sodern, Malvern Panalytical, 2024)

### II.A.4.1.2 Diagraphie par forage pétrolier

La diagraphie par forage pétrolier ou minier, ou « well logging », est une technique utilisée dans l'industrie pétrolière pour évaluer les caractéristiques géologiques et pétro physiques des formations traversées par un puits de forage. Cette technique, illustrée par la Figure II-6, implique l'insertion d'instruments de mesure, comme une source neutronique, dans un puits de forage. Des neutrons sont émis et vont interagir avec la roche environnante. La méthode est extrêmement sensible pour la détection des couches hydrogénées (par exemple, le pétrole) en raison de la thermalisation par les neutrons et la génération de rayonnements gamma de capture ( $n, \gamma$ ) par les oléfines. L'utilisation de source DT remplace les sources d'américium-béryllium utilisées auparavant parce qu'elles produisent trois fois plus de neutrons par seconde. Ceci améliore les performances des mesures neutroniques, tout en générant moins de dose pour les travailleurs du fait de pouvoir interrompre l'émission à n'importe quel instant.



Figure II-6 : Diagraphie (Sodern, 2024)

La diagraphie des puits de forage permet de déterminer la porosité, la salinité, la densité, la teneur en humidité et en oxygène (Chapellier, 2011). Ces analyses vont se répartir selon le type de réactions ayant des caractéristiques temporelles différentes :

- Réactions de diffusion inélastique prompt ( $n, n'\gamma$ ) sans délai. Ces réactions sont utiles pour la détection de C, N, Mg, Al, Si, S, Ca et plus particulièrement pour l'analyse de la teneur en oxygène. Le rapport carbone/oxygène (C/O) est utilisé pour déterminer la saturation en pétrole de la formation indépendamment de la salinité de l'eau.
- Réactions de capture radiative ( $n, \gamma$ ) utilisées pour la détection de H, Cl, Al, P, S, Ca, Fe, Pb, B et pour mesurer la position des interfaces pétrole/eau. La localisation de l'interface dépend du fait qu'une salve de neutrons se désintègre beaucoup plus rapidement dans les eaux salines que dans le pétrole en raison de la section efficace élevée de capture du chlore.

Cette réaction est aussi utilisée pour la mesure du temps de décroissance thermique pour les éléments ayant une section efficace élevée, tels que le bore, le chlorure et les éléments de terres rares.

- Activation à longue demi-vie principalement utilisée pour déterminer les niveaux d'aluminium et de vanadium.

#### II.A.4.2 Défense & Sécurité

##### II.A.4.2.1 Dissuasion nucléaire

L'application majeure en défense est « l'amorce neutronique », déclencheur de l'arme atomique qui est au cœur de la souveraineté nationale. En France, cette mission est confiée depuis 1962 à la société Sodern qui contribue ainsi à la sûreté de fonctionnement et la fiabilité des armes en opération (Sodern, sodern, 2022).

##### II.A.4.2.2 Détection d'explosifs

En sécurité, la détection de matériaux explosifs, de drogues illicites, d'armes chimiques et nucléaires est potentiellement possible en utilisant des neutrons thermiques produits par générateur. Cela peut également être fait en utilisant un générateur pulsé (PTNA) qui permet la mesure à la fois des captures promptes et des décroissances gamma. Plusieurs approches ont été développées dans lesquelles les concentrations et les ratios d'oxygène, d'azote et de carbone sont corrélés aux ratios connus dans les matériaux explosifs ainsi que les articles de contrebande (Harry E. Martz, 2021). Pour la détection d'armes chimiques, les éléments d'intérêt comprennent le chlore (principalement dans les armes de génération ancienne), le phosphore (dans les armes de nouvelle génération), le fluor, l'azote, l'oxygène et l'hydrogène.

##### II.A.4.3 Autres domaines d'application

Les applications des tubes neutroniques sont innombrables, couvrant une multitude de domaines. En analyse d'art, la PGNAA (Analyse par Neutrons Gammes Promptes Actives) et l'utilisation de la diffusion inélastique des neutrons (méthode INSECT) offrent une méthode non destructive pour examiner les échantillons, tout en bénéficiant d'une grande profondeur de pénétration. Dans le domaine médical, les sources neutroniques DT sont utilisées pour mesurer in vivo les niveaux corporels totaux d'éléments tels que le calcium, l'azote, le carbone, l'oxygène, le potassium, le chlore, le sodium, le phosphore et l'hydrogène. Des applications de mesure non destructives incluent également la neutrographie, comme celle réalisée au CEA avec le réacteur Orphée, fournissant un flux de neutrons thermiques de l'ordre de  $10^{14} \text{ n}\cdot\text{s}^{-1}\cdot\text{cm}^{-2}$ . On trouve également des applications en amont (évaluation du taux d'enrichissement des pastilles d'uranium) et en aval (recyclage des déchets radioactifs) du cycle du combustible nucléaire. Un tableau non exhaustif des applications utilisant des générateurs de neutrons est disponible en Annexe VIII.A Applications des tubes neutroniques.

### B. COMPOSANTS

Bien que les générateurs de neutrons produisent des réactions de fusion, il peut être démontré facilement que l'énergie libérée par ces réactions est plusieurs fois inférieure à l'énergie nécessaire pour accélérer les ions :

$$\begin{aligned} \text{Energie libérée} &= \text{flux neutrons} * \text{énergie déposée par fusion} && \text{(II-6)} \\ &= 10^8 \text{ n}\cdot\text{s}^{-1} * 17,6 \text{ MeV} * 1.6 * 10^{-19} \text{ C} \\ &= 0,282 \text{ mW} \\ \text{Energie nécessaire} &= 100 \mu\text{A} * 100 \text{ kV} = 10 \text{ W} \end{aligned}$$

Il n'y a donc aucune possibilité d'utiliser ces machines pour produire une puissance de fusion nette, comme pourrait l'être une centrale nucléaire. A titre comparatif, un réacteur nucléaire va produire en moyenne 6,76 TWh pour une consommation annuelle de 0,37 TWh, soit environ 5% de sa puissance (EDF, 2018).

En reprenant le schéma de la Figure II-4, l'on comprend que ces générateurs doivent être composés :

- D'une source de gaz ;
- D'une source d'ions ;
- D'une partie accélératrice ;
- D'une cible ;
- De systèmes annexes : blindage et connexion électrique.

Nous allons détailler ces différents dispositifs en appuyant particulièrement sur la source d'ions et son plasma.

#### II.B.1 RÉSERVOIR DE GAZ

Le but est d'avoir une source interne d'hydrogène. À cette fin, six méthodes de stockage sont envisageables (Züttel, 2004) :

1. Cylindre de gaz à haute pression (jusqu'à 800 bars).
2. Hydrogène liquide dans des réservoirs cryogéniques (à 21 K).
3. Hydrogène adsorbé sur des matériaux à grande surface spécifique (à  $T < 100 \text{ K}$ ).
4. Absorption sur des sites interstitiels dans un métal hôte (à pression et température ambiantes).
5. Liaison chimique dans des composés covalents et ioniques (à pression et température ambiantes).
6. Oxydation de métaux réactifs, par exemple Li, Na, Mg, Al, Zn avec de l'eau.

Dans le cas d'une source électrique scellée, l'une des techniques est particulièrement avantageuse : l'absorption par hydruration d'un métal hôte. Le principal avantage réside dans son utilisation à température et pression ambiantes, garantissant ainsi la sécurité et la stabilité lors du stockage et de la manipulation. La libération de l'hydrogène est contrôlée par la modification de la température, et elle est réversible, permettant la réabsorption de l'hydrogène restant après son utilisation.

### II.B.1.1 Physique d'hydruration

Le phénomène d'hydruration correspond à l'incorporation d'hydrogène dans les sites interstitiels du réseau cristallographique d'un métal de transition ayant des orbitales incomplètes. L'hydrogène se dissout en solution solide par la diffusion des adatoms (issus de la dissociation de diatomique  $H_2 \rightarrow 2H$ ) dans le solide.

Ce processus se déroule en cinq étapes, synthétisées dans la Figure II-7, à savoir :

1. Transport de masse des molécules d'hydrogène gazeux à l'interface solide-gaz ;
2. Adsorption des atomes d'hydrogène à la surface. Cette phase se déroule au sein de sites de dissociation spécifiques. La plupart des matériaux sont revêtus d'une couche de passivation due à la présence d'oxyde ou d'hydroxyde de métaux, agissant comme une barrière de diffusion ;
3. La dissociation des molécules d'hydrogène en hydrogène atomique et la chimisorption en surface ;
4. Pénétration de surface par les atomes H et transition des atomes H de l'état chimisorbé à l'état soluté ;
5. Diffusion des atomes d'hydrogène dans le volume, transition de l'état adsorbé en surface à l'état absorbé et diffusé dans le réseau métallique. À la fin de cette étape, la concentration en hydrogène dans le matériau atteint la saturation de la phase  $\alpha$ , et l'hydrure commence à précipiter.

Pour les matériaux ductiles tels que le titane, le zirconium et les terres rares, la transition vers la phase d'hydrure s'effectue principalement par la croissance de quelques germes, formant ainsi une enveloppe d'hydrure autour des grains.

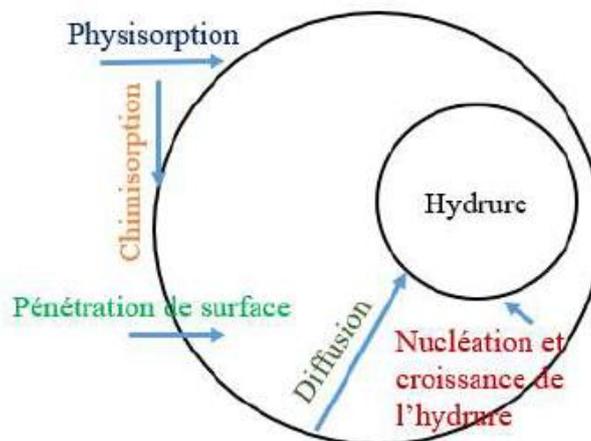


Figure II-7 : Diagramme des étapes d'absorption de l'hydrogène (Boulila, 2021)

Pour procéder à l'hydruration, le fritté de titane est chauffé ce qui permet d'une part de favoriser la diffusion et d'autre part d'augmenter son paramètre de maille par dilatation thermique.

### II.B.1.2 Réservoir

Reposant sur le processus d'hydruration, nous pouvons obtenir un réservoir à hydrogène, plus particulièrement en deutérium-tritium. Cela correspond à un matériau stockant des isotopes de l'hydrogène en solution solide dans la phase  $\alpha + \gamma$  du titane. Les matériaux sensibles à l'hydruration sont les métaux de transition (titane, zirconium, scandium, erbium, vanadium...). Le mélange deutérium-tritium est donc stocké sous la forme d'hydrure de titane solide. Ce réservoir repose sur sa capacité à stocker de l'hydrogène de manière réversible en modifiant la température. Ce phénomène est défini par la Loi de Sievert, exprimée dans l'équation **Erreur ! Source du renvoi introuvable**.suivante.

$$P_{H_2} = e^{-\Delta S k / c^2} e^{\Delta H / kT} \quad (II-7)$$

Avec :  $P_{H_2}$  la pression d'équilibre (absorption-désorption) de l'hydrogène  
 $\Delta S$  la variation d'entropie  
 $\Delta H$  la variation d'enthalpie  
 $c^2$  la concentration en hydrogène dans le titane  
 $k$  la constante de Boltzmann  
 $T$  la température

La pression d'équilibre du deutérium et du tritium, comparable à celle de l'hydrogène, est atteignable en chauffant le matériau hydruré à hauteur de 380° C pour le Titane.

Le réservoir à hydrogène est actuellement composé d'un fil de tungstène enroulé autour d'un barreau d'alumine permettant de chauffer un fritté de titane. Cet élément combine hydruration d'un métal et un effet piège à gaz dû au titane (effet getter).

### II.B.2 SOURCE D'IONS

Ce chapitre examine les mécanismes ioniques, se focalisant sur les bases physiques de leur fonctionnement, les processus d'ionisation et les technologies associées. Il débute par une analyse de la physique de l'ionisation en différenciant les différents phénomènes d'ionisations.

Une source d'ions est un dispositif qui produit des ions chargés (positifs ou négatifs) à partir d'atomes ou de molécules neutres. Une source d'ions est donc composée :

- D'un échantillon d'atomes ou de molécules neutres qui peut être introduit de différentes manières telle que l'évaporation, l'érosion ou la vaporisation laser ;
- D'un système d'ionisation qui transforme les molécules neutres en ions ;
- D'un système d'extraction, permettant d'extraire les ions de la source.

Par la suite nous allons voir les différents phénomènes physiques d'ionisation ainsi que le comportement des ions dans la source amenant à la création d'un plasma.

#### II.B.2.1 Physique ionisation

De façon générale, l'ionisation est un processus qui enlève ou ajoute des charges à un élément neutre. Elle est schématiquement représentée par la formule suivante :



Elle peut être due à :

- Des phénomènes physiques ;
- Des phénomènes chimiques ;
- A la nature même de l'échantillon, comme les liquides ioniques (Berthod & Carda-Broch, 2004).

Dans une source d'ions, la majorité des ionisations viennent de phénomènes physiques ce qui permet de contrôler ces interactions.

#### II.B.2.1.1 Ionisation par impact

On retrouve en premier lieu l'ionisation par impact électronique, appelée aussi ionisation électronique, qui consiste à bombarder l'échantillon avec des électrons de haute énergie provoquant l'arrachement d'électrons et la formation d'ions. Cette méthode produit un mélange d'ions positifs et négatifs ainsi que des espèces neutres, mais l'on retrouve principalement des spectres d'ions positifs car leur formation est facilitée.

De façon théorique, on retrouve un électron incident ayant une quantité de mouvement  $K_i$  et une énergie  $E_i$  interagissant avec un électron de la cible. Lors de l'interaction, l'électron incident est diffusé avec une quantité de mouvement  $K_d$  et un angle de diffusion  $\theta_d$ . Dans la situation où la perte d'énergie est suffisante, la cible éjecte un électron ayant comme paramètre physique  $\theta_e$  comme angle et  $K_e$  comme quantité de mouvement.

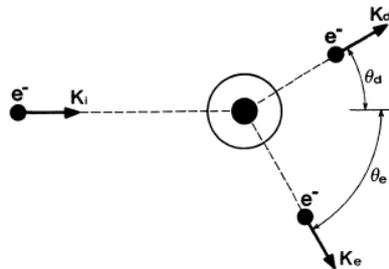


Figure II-8 : Schéma d'une ionisation électronique ( $e$ ,  $2e$ ) (Cappello, 1989)

Pour les électrons, la cible est un ensemble d'atomes ou de molécules neutres. La quantité d'ions créés dépend du courant d'électrons disponible et de la section efficace d'ionisation de la particule cible. La section efficace se définit avec l'équation :

$$\sigma = \frac{1}{n_{\text{atome}} L_{\text{collision}}} \quad (\text{II-9})$$

Avec :  $n_{\text{atome}}$  la densité d'atomes à l'intérieur du volume source  
 $L_{\text{collision}}$  le libre parcours moyen d'électron

Lorsque l'on étudie les processus d'ionisation à échelle moléculaire et non atomique, il est nécessaire de déterminer la section efficace triplement différentielle notée SETD. Dans une molécule, la SETD doit en même temps décrire l'évolution lors de la collision des électrons (incident, éjectés et diffusés), leurs interactions mutuelles, tout en prenant en compte la présence de plusieurs centres diffuseurs dus à la molécule.

L'avantage de ce processus est qu'il va donner un résultat stable quelle que soit la source d'électrons ou de l'instrument lui-même, engendrant des bibliothèques de spectres de référence.

Avec un faisceau d'électrons de 70 eV et un potentiel d'ionisation des molécules de l'échantillon est de l'ordre de 10 eV, on va retrouver une fragmentation étendue ne laissant que très peu ou pas de trace d'ion moléculaire. Cependant l'utilisation d'un faisceau autour de la centaine d'électronvolts permet à la fois une stabilité et une reproductibilité des résultats ainsi qu'une compatibilité avec les détecteurs. On appelle ce processus « dur » en opposition à des ionisation « douces » où l'on retrouve des ions moléculaires.

Les sections efficaces partielles d'ionisation, que l'on retrouve par exemple dans la figure suivante nous permettent d'identifier la molécule.

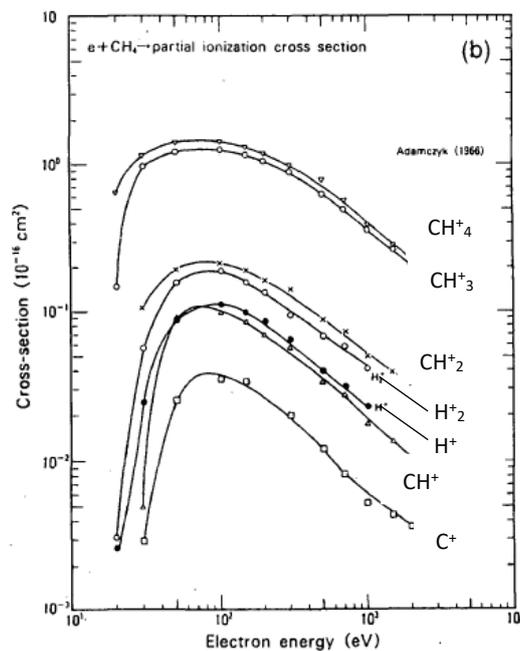


Figure II-9 : Sections efficaces partielles d'ionisation de CH<sub>4</sub> due à l'impact électronique (TAWARA, 1992)

La forme est toujours la même sans relation évidente entre la section efficace et une quelconque forme moléculaire. On note que les sections efficaces sont généralement d'autant plus faibles que le potentiel d'apparition du fragment, soit le seuil énergétique où un fragment donné apparaît ionisé correspondant est élevé. L'abondance des différents fragments est dépendant de l'énergie des électrons incidents jusqu'à 90 – 100 eV où les sections efficaces se lissent et ont une faible variation.

Une application de cette technique est très utilisée depuis les années 70 : l'Electron Momentum Spectroscopy (EMS), ou la spectrométrie par impulsion électronique. Elle vise à étudier la distribution de l'énergie cinétique et du moment cinétique des électrons éjectés lors de l'interaction entre des électrons incidents et l'échantillon. Elle fournit des informations sur la structure électronique des cibles, y compris les orbitales électroniques, les corrélations électroniques et la distribution de charge. Elle permet de tester par exemple des modèles de la chimie quantique (Brion, 2001) ou de comprendre des mécanismes de liaisons chimiques (WANG, 2007).

En termes d'application, l'ionisation électronique reste très majoritairement utilisée dans la spectrométrie de masse. Les ions ainsi créés sont séparés en fonction de leur rapport masse/charge puis détectés et transformés en signal électrique. Les signaux produits sont ensuite convertis en un spectre de masse qui indique l'intensité des ions en fonction du rapport masse/charge.

#### II.B.2.1.2 Ionisation par décharge plasmique

Les sources d'ions à décharge plasmique représentent une évolution par rapport aux sources d'ionisation par impact électronique décrites précédemment. Dans ces sources, la densité électronique et la dynamique sont dominées par l'émission électronique de la cathode et l'application de champs externes. À mesure que la densité d'ions et d'électrons dans la source augmente, on considère qu'un plasma a été créé :

- La distance parcourue par l'électron entre l'anode et la cathode est du même ordre de grandeur que le libre parcours moyen de collision, par conséquent la majorité des électrons provoqueront une ionisation.
- Un grand nombre d'ions est créé, ils peuvent être accélérés vers la cathode où ils provoquent également l'émission d'électrons depuis la surface de la cathode.
- Le plasma est quasi neutre avec un équilibrage des charges positives et négatives.
- Un blindage du plasma par la création de gaine non chargée qui l'entoure.

#### II.B.2.1.3 Tension de décharge

La génération d'ions et d'électrons à partir du gaz initial induit la possibilité de soutenir une décharge où le courant entre les électrodes de la cathode et de l'anode n'est plus prédominé par les électrons de la cathode. Au lieu de cela, il est dominé par les nouveaux ions et électrons créés à partir du gaz ainsi que par les électrons secondaires émis suite à l'impact ionique sur la surface de la cathode. Les travaux de Paschen, menés dans les années 1880, ont mis en évidence que la tension nécessaire pour provoquer la dégradation d'un gaz ( $V_b$ ) était exprimée par l'équation (II-10) :

$$V_b = \frac{aPd}{\ln(Pd) + b} \quad (\text{II-10})$$

Avec : a et b constantes du gaz

P la pression

d la distance entre les électrodes

La représentation graphique de cette fonction pour un gaz est appelée la courbe de Paschen (Figure II-10), où l'on observe qu'il existe une tension minimale nécessaire pour provoquer le claquage d'un gaz.

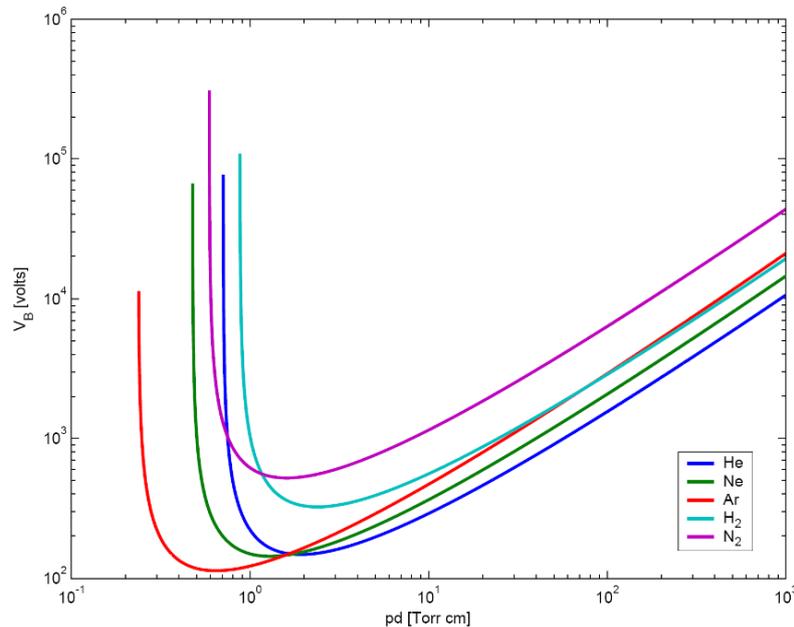


Figure II-10 : Courbes de Paschen (Michael A. Lieberman, 2005)

A une pression fixe  $p$ , on peut imaginer l'application d'une tension  $V$  tout en modifiant la distance  $d$  entre nos électrodes. A très petite distance, nous sommes sous la courbe de Paschen : le claquage ne se produit pas. En augmentant la distance, nous passons au-dessus de la courbe provoquant ainsi un claquage. En augmentant davantage  $d$ , nous atteignons finalement une distance où la décharge ne peut plus être soutenue.

Il convient de noter que le paramètre  $b$  dépend également du nombre d'électrons secondaires émis par la cathode par ion incident, de façon à intégrer les caractéristiques de la cathode dans les courbes de Paschen.

### II.B.2.1.4 Photo-ionisation

La photo-ionisation est le processus physique dans lequel un ion se forme à partir de l'interaction d'un photon avec une molécule ce qui se traduit par la formule suivante :



Lorsque l'énergie du photon est supérieure à l'énergie d'ionisation de la molécule, un des électrons des couches périphériques est excité, plaçant la molécule elle-même en état excité  $X^*$ , jusqu'à ce que cet électron soit éjecté provoquant l'apparition d'un ion positif  $X^+$  et un électron libre  $e^-$ .

Les atomes ou les molécules sont exposés à une source de photons, généralement ultraviolette (UV) ou X-ray, qui ont une énergie suffisante pour exciter les électrons présents dans l'échantillon. Les

électrons éjectés, appelés photoélectrons, transportent des informations sur leurs états pré-ionisés grâce à leur énergie, on retrouve :

$$E_{\text{electron éjecté}} = E_{\text{photon}} - E_{\text{liaison électronique}} \quad (\text{II-12})$$

Si les photons ont une énergie inférieure à l'énergie de liaison des électrons, ils peuvent être absorbés ou diffusés mais ne photoioniseront pas la molécule.

L'avantage premier de cette technique est qu'elle peut être utilisée à pression atmosphérique (API). On la retrouve notamment dans différentes applications de détecteurs de seuil de pollution (Galland, Courtois, & Martin, 2009) ou de l'exposition à l'ammoniac (Dirrengerger, Nicot, & Kunz-Iffli, 2018).

#### II.B.2.1.5 Ionisation par laser

L'ionisation par laser repose sur l'utilisation de lasers à haute énergie pour ioniser des échantillons. Il utilise à la fois les interactions thermiques et de type photochimique pour la création des ions (Sifi, 2008).

L'énergie apportée par le rayonnement laser se disperse dans le matériau par conduction thermique. Les photons ne sont pas assez énergétiques pour réaliser une ionisation photochimique de l'échantillon. Par contre, grâce à leur nombre, les photons provoquent un échauffement de la surface par chocs successifs. Il en résulte une fusion et une vaporisation de l'échantillon.

L'application principale de l'ionisation par laser est une spectrométrie de masse appelée MALDI : la désorption/ionisation laser assistée par matrice (Manuelli, 2018). L'échantillon est mélangé à une matrice qui est bombardée de photons par le laser, ce qui entraîne une désorption puis une ionisation de la matrice qui va transférer son énergie à l'échantillon qui va s'ioniser en ions moléculaires.

#### II.B.2.1.6 Autres Types d'ionisation

##### II.B.2.1.6.1 Ionisation chimique

Contrairement aux autres méthodes d'ionisation vues précédemment qui impliquent des particules incidentes, l'ionisation chimique (CI) repose sur des réactions chimiques pour produire des ions chargés. Elle se base sur un transfert de protons, qui favorise l'apparition d'ions moléculaires et qui donc est considéré comme une ionisation « douce ».

Le mécanisme d'ionisation de la CI est similaire à celui de l'ionisation par impact pour l'étape d'ionisation initiale à la différence que la source contient un gaz réactif chimique.

Initialement développée pour l'étude des réactions ion/molécule à haute pression dans la source d'un spectromètre de masse, la CI s'est avérée sensible à de petites quantités d'impuretés dans les gaz analysés. La méthode utilise des réactions rapides entre ions réactifs ( $\text{CH}_5^+$  et  $\text{C}_2\text{H}_5^+$ ) et des composés ajoutés pour former des ions caractéristiques, permettant ainsi l'analyse de mélanges complexes sans pré-séparation chromatographique (Munson, 2006). Elle offre une alternative efficace à la spectrométrie de masse conventionnelle, en particulier pour des composés difficiles à analyser.

### II.B.2.1.6.2 Thermo-ionisation

L'ionisation de surface, souvent appelée thermo-ionisation ou émission ionique thermique, est le processus par lequel un matériau revêtu ou dirigé sur une surface métallique chauffée s'évapore dans un état ionique négatif ou positif.

Une approche théorique est fournie par l'équation de Saha-Langmuir (II-13), qui tente d'évaluer le taux d'ionisation. Lorsque des atomes interagissent avec la surface d'un matériau porté à haute température, une fraction d'entre eux sont réémis sous forme d'ions positifs et une autre sous forme d'atomes neutres. Cette équation évalue le taux d'ionisation en fonction de la température, de la fonction de travail du filament, de l'énergie de première ionisation et d'autres paramètres. Une compétition se produit entre les atomes émis et le support pour retenir les électrons, influençant l'efficacité de la thermo-ionisation.

$$\frac{n_i}{n_0} = A \exp\left(\frac{W - I}{kT}\right) \quad (\text{II-13})$$

Avec :  $n_i/n_0$  proportion de particules réémises sous forme d'ions face aux atomes neutres

A coefficient caractéristique de l'élément

W le travail de sortie du filament (eV)

I énergie de première ionisation (eV)

K constante de Boltzman

T température (K)

L'équation montre que le taux d'ionisation augmente avec la température, mais il est également influencé par la différence entre la fonction de travail du filament et l'énergie de première ionisation. Pour une meilleure efficacité d'ionisation, il est souhaitable d'avoir une fonction de travail élevée et une faible énergie d'ionisation du matériau.

Cependant, l'équation de Saha-Langmuir a des limites pratiques, ne tenant pas compte de certains phénomènes comme les propriétés volatiles des espèces ou des procédés chimiques présents au niveau des filaments (Delmore, 1991).

### II.B.2.2 Exemples de sources d'ions

Malgré la diversité des sources d'ions, nous pouvons identifier les principaux composants d'une source d'ions. Ils peuvent être résumés comme suit.

- Une chambre principale soit un espace où les processus d'ionisation ont lieu et à travers laquelle les ions créés dériveront pour arriver à la région d'extraction. Cette chambre doit être étanche au vide mais, en fonction du type de source, elle peut être en métal ou en céramique/verre. Cet espace abrite un orifice par lequel les ions sortiront de la source.
- La matière à ioniser. Pour le type d'ions requis, de la matière doit être introduite dans la source. Cela peut se présenter sous forme de gaz ou d'un gaz composé contenant le type d'atomes souhaités ainsi que sous forme de matériau solide (voire liquide) qui sera chauffé

pour produire un gaz. Parfois, le matériau peut être introduit dans les électrodes, de sorte qu'il sera pulvérisé dans la chambre principale de la source.

- Une source d'ionisation. L'ionisation des atomes nécessite une certaine énergie et donc de l'énergie devra être fournie sous une forme ou une autre à la source.
- Un système d'extraction. L'orifice par lequel les ions émergeront doit avoir un champ électrique appliqué afin que les ions puissent être extraits de la source et accélérés à une énergie donnée.

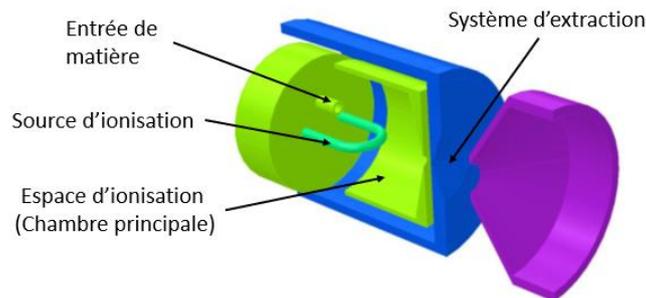


Figure II-11 : Schéma général d'une source d'ions (Scrivens, 2015)

À partir de ces composants fondamentaux, il existe différents types de sources divergent significativement les unes avec les autres. Au-delà des composants mentionnés ci-dessus, de nombreux sous-systèmes sont nécessaires pour rendre la source opérationnelle, notamment des systèmes de pompage sous vide, des alimentations électriques et des commandes électroniques.

#### II.B.2.2.1 Source radiofréquence

Au lieu d'utiliser une tension cathode-anode pour générer le champ électrique, les dispositifs de radiofréquence (RF) exploitent des champs électriques oscillants à haute fréquence pour accélérer les ions vers une cible. Le champ électrique oscillant est caractérisé par des amplitudes inférieures aux dimensions de la source. Dans ce processus, les électrons acquièrent de l'énergie grâce à des collisions, également appelées "frictions". Ces collisions, lorsqu'elles sont ionisantes, contribuent au phénomène d'ionisation dans le système. Crucial pour la stabilité, un équilibre est maintenu entre les taux d'ionisation et de perte. Les sources d'ions RF dispose d'une cavité, appelée également résonateur, qui génère les champs électriques. On distingue trois phénomènes qui vont s'amorcer à des plages de fréquence et de puissance différentes :

- Le couplage capacitif ;
- Le couplage inductif ;
- Le couplage d'onde.

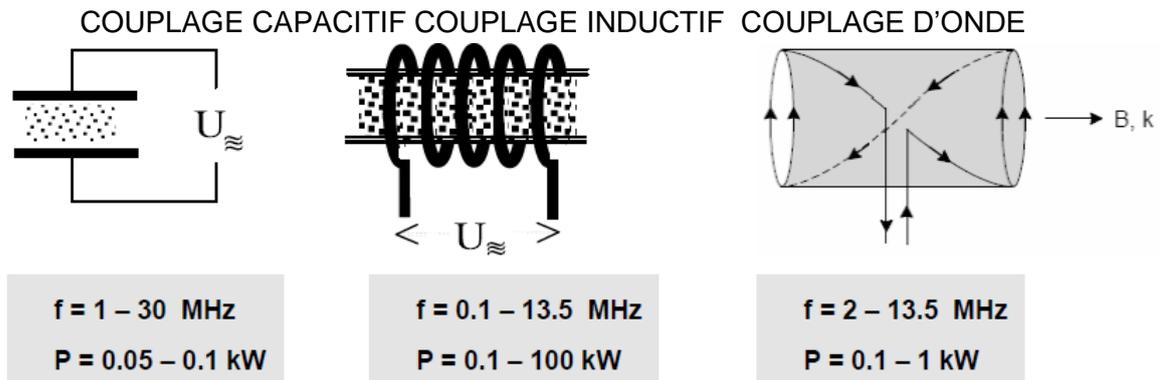


Figure II-12 : Trois méthodes différentes de couplage RF (Kraus, 2012)

Le couplage capacitif est la création d'un champ électrique simplement par transfert d'énergie dans un réseau électrique. Cela permet de faire osciller le "nuage électronique" entre les électrodes, générant une chute de tension RF élevée dans la gaine cathodique. Lorsque la fréquence RF est bien inférieure à la fréquence du plasma ionique, les ions sont accélérés dans cette gaine et la majeure partie de la puissance RF est dédiée à cette accélération ionique. Cela entraîne un bombardement des électrodes par des ions énergétiques de quelques keV, faisant de ce processus une technique courante dans le traitement de surface en technologie plasma. En revanche, lorsque la fréquence RF est bien supérieure à la fréquence du plasma ionique, les ions ne peuvent pas suivre le champ RF, résultant en une faible énergie ionique d'environ 10 eV.

Dans un système à couplage inductif, le champ électrique est généré par la variation temporelle du champ magnétique. Un courant RF circulant dans une bobine (IRF) génère un champ magnétique axial. Ce champ magnétique induit à son tour un champ électrique. Pendant ce processus, les électrons sont accélérés et des collisions ionisantes avec les particules neutres se produisent. La force de Lorentz provoque une compression du plasma, ce qui a plusieurs effets bénéfiques, notamment, la réduction de l'effet de peau (skin effect) et une amélioration du couplage à haute puissance.

Le couplage d'onde se caractérise par une onde électromagnétique basse fréquence dans des plasmas confinés en présence d'un champ magnétique. Le champ électrique dans ces ondes est dominé par l'effet Hall et est presque perpendiculaire au courant électrique (plutôt que parallèle comme il le serait sans le champ magnétique), de sorte que la composante propagatrice des ondes est en forme de tire-bouchon (hélicoïdale).

L'avantage clé des sources RF est le contrôle précis des paramètres d'accélération ionique, comme l'énergie, le courant ou la focalisation du faisceau d'ions. Ces principes s'appliquent dans une plage de fréquences allant de 0,1 à 30 MHz, avec une puissance variant de 50 W à 800 kW.

#### II.B.2.2.2 Source Laser

Les lasers permettent de produire des faisceaux de photons de haute luminosité et monochromatiques qui peuvent être utilisés de deux manières pour la production d'ions : les sources d'ionisation directe par laser et les sources d'ions de plasma laser.

L'utilisation d'un faisceau laser en mode pulsé et focalisé permet d'obtenir des densités de puissance très élevées. Lorsque ce faisceau est dirigé vers une surface solide, ces densités de puissance élevées entraînent facilement la vaporisation de la surface. Au cours de la transition de la densité d'un solide (environ  $10^{23}$  atomes·cm<sup>-3</sup>) à la faible densité atomique du vide, une certaine densité mènera à une fréquence d'oscillation électronique du plasma égale à la fréquence du laser. La relation entre la longueur d'onde  $\lambda$  de la lumière laser et la densité d'électrons  $n_e$  à laquelle cette résonance se produit est donnée par l'équation (II-14) :

$$\lambda = \frac{2\pi c}{e} \sqrt{\frac{m_e \epsilon_0}{n_e}} \quad (\text{II-14})$$

Avec :  $\epsilon_0$  la permittivité du vide  
 $q$  la charge  
 $m_e$  la masse de l'électron

Lorsqu'une couche d'atomes recouvre la surface du matériau, leurs électrons périphériques peuvent occuper les niveaux d'énergie du matériau. Si ces atomes sont désorbés de la surface (par chauffage ou bombardement), une fraction sera libérée sous forme chargée. L'équation de Saha-Langmuir est utilisée pour calculer le rapport du nombre d'atomes désorbés sous forme d'ions ( $n_i$ ) et de neutres ( $n_0$ ) en fonction du travail de sortie du matériau de base ( $\phi_s$ ) et du premier potentiel d'ionisation de l'atome désorbé ( $\phi_i$ ).

### II.B.2.2.3 Cyclotron

Une particule chargée dans un champ magnétique effectue des orbites circulaires dans une direction perpendiculaire au champ magnétique. Ce phénomène se traduit par l'équation (II-15) :

$$f_c = \frac{1}{2\pi} \frac{q e B}{m} \quad (\text{II-15})$$

Avec :  $f_c$  la force centrifuge (en N)  
 $q$  la charge  
 $B$  force de Lorentz du champ magnétique  
 $m$  la masse

Cette fréquence est indépendante de la vitesse de la particule tant que des énergies relativistes ne sont pas atteintes. Pour les électrons, cela se traduit par une formule pratique  $f_c = 28 \text{ GHz} \cdot T^{-1}$ . L'application d'un champ magnétique fort à un plasma, par exemple, 0,5 T avec une paire de bobines de type Helmholtz, entraîne la circulation des électrons à une fréquence de 14 GHz.

L'injection de micro-ondes de cette même fréquence dans le plasma amène le champ électrique de l'onde à être en résonance avec l'orbite électronique, jouant sur la vitesse des électrons en les accélérant ou en les ralentissant. Cette conversion d'énergie chauffe efficacement les électrons, les

rendant capables de provoquer l'ionisation par impact électronique du gaz injecté ou d'ioniser davantage les ions dans le plasma.

Les sources d'ions à résonance cyclotronique électronique (ECR) exploitent ce principe de gain d'énergies par les électrons. Lorsque les décharges ECR sont exploitées à des pressions gazeuses d'environ  $1 \times 10^{-6}$  Torr, l'énergie des électrons peut dépasser 1 keV et, en même temps, les taux de recombinaison pour les ions créés sont très bas. Ce sont des conditions optimales pour la création d'ions fortement chargés par des processus d'ionisation étape par étape.

#### II.B.2.2.4 Source de Penning

Une source d'ions dite de Penning (PIG IS en anglais pour Penning Ionisation Gauge Ion Source) est composée généralement d'une anode cylindrique, de capuchons de cathode situés à chaque extrémité et d'un puissant champ magnétique aligné le long de l'axe cylindrique comme le montre la Figure II-13. Le plasma est généré par décharge gazeuse à haute tension dans l'enceinte où règne la combinaison d'un champ magnétique axial et d'un champ électrique spécifique. Le couplage de ces deux champs permet d'augmenter le parcours des électrons au sein de la source et donc la probabilité d'ionisation.

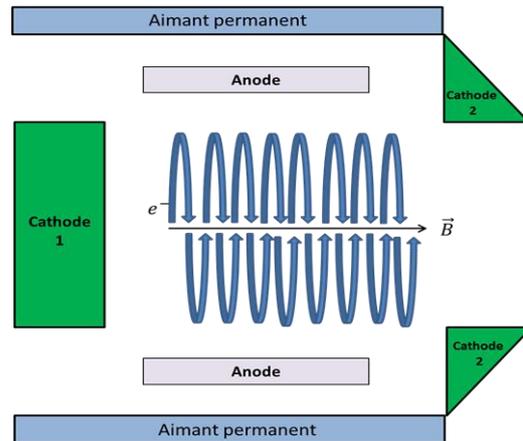


Figure II-13 : Schéma simplifié d'une source d'ions Penning (Fox, 2019)

La haute tension provoque la répartition du champ électrique dans la source et les électrons oscillent entre les deux cathodes. L'utilisation d'un champ magnétique le long de la direction du trajet des électrons ionisants induit une gyration de Larmor autour des lignes de champ magnétique, avec un rayon donné par la formule (II-16) :

$$r_{e^-} = \frac{mv_{\perp}}{eB} \quad (\text{II-16})$$

Avec :  $v_{\perp}$  la composante de vitesse transversale au champ magnétique axial

Pour améliorer l'ionisation, ce genre de source se base sur le confinement des électrons à partir d'un gaz de dihydrogène  $H_2$  composé à 50 % de  $D_2$  et 50 % de  $T_2$ .

En raison de sa simplicité de conception et de fonctionnement, de sa petite taille et de sa faible consommation d'énergie, les sources d'ions Penning sont largement utilisées (France Brevet n° 0362945, 1989; BK.Das, 2011; Fathi, 2017; Sy, 2013).

#### II.B.2.3 Avantage et inconvénients des sources d'ions

L'un des premiers avantages des sources d'ions est le contrôle précis de l'énergie et du flux des espèces ionisées. De plus, ces sources produisent généralement un faisceau monoénergétique, ce qui facilite

les processus de traitement. De manière importante, la pression dans la chambre de traitement est considérablement inférieure aux pressions de décharge plasma, ce qui contribue à une meilleure efficacité et à des conditions de travail plus stables. En outre, les sources d'ions peuvent être combinées avec d'autres procédés tels que l'évaporation sous vide, la pulvérisation ou l'analyse, ce qui élargit encore leur potentiel d'application.

Cependant, malgré leurs nombreux avantages, les sources d'ions présentent également quelques inconvénients qu'il convient de prendre en compte. Tout d'abord, il est souvent difficile d'atteindre des flux d'ions intenses, en particulier à faible énergie (inférieure à 100 eV), ce qui peut limiter certaines applications nécessitant des conditions spécifiques. De plus, l'uniformité du traitement en surface peut être limitée, ce qui peut poser des défis pour certaines applications nécessitant une répartition homogène des ions. L'interaction du faisceau avec les grilles du système d'extraction peut également poser des problèmes, tels que la pollution du faisceau et l'usure prématurée des grilles, nécessitant ainsi une maintenance régulière et des précautions lors de l'utilisation. Enfin, dans certains cas, il est nécessaire d'utiliser un dispositif de neutralisation du faisceau pour compenser les effets indésirables de la charge électrique des ions sur le traitement ou sur les substrats (Tessier, 2006).

### II.B.3 EXTRACTION ET ACCÉLÉRATION

Contrairement au générateur de plasma pur, nous devons extraire les ions de ce plasma. Pour cela, la section de la frontière du plasma d'où les ions sont émis vers la région d'accélération devient fixe sous certaines conditions, facilitant ainsi l'extraction des ions. Les ions sont alors attirés vers la région d'accélération depuis la zone d'ouverture dans l'électrode, schématisé sur la Figure II-14. Une zone intermédiaire entre le plasma neutre et la paroi (ici schématisé par l'électrode), appelée une gaine, se forme où l'égalité des flux sur la paroi entraîne la perte de neutralité dans cette zone, c'est-à-dire qu'un équilibre est maintenu par la décroissance du potentiel le long de cette gaine.

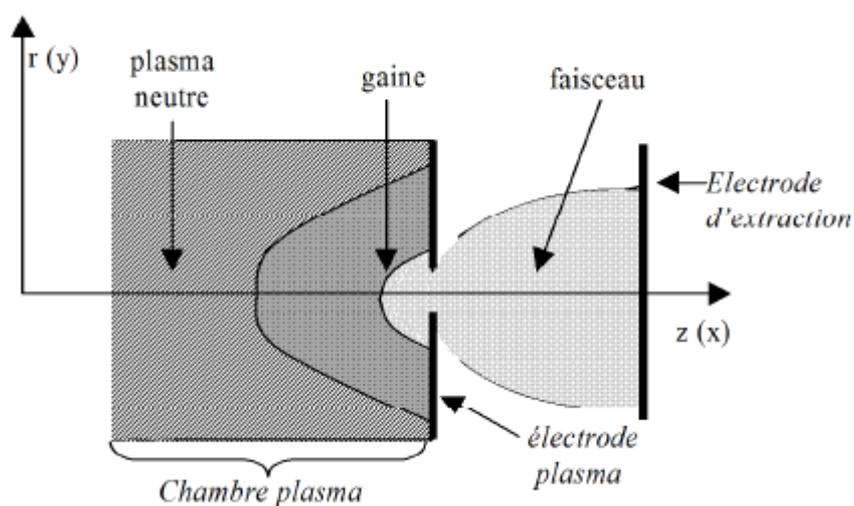


Figure II-14 : Schéma simplifié de l'extraction du plasma dans la source d'ions (Pougeard-Dulimbert, 2001)

## II. Source neutronique électrique

De plus, la présence de cette cavité au niveau de la gaine dans la source d'ions permet un blindage fiable du volume de la source d'ions contre le champ d'accélération.

Les particules chargées sont accélérées pour augmenter leur énergie. Le mouvement des particules est régi par les lois fondamentales de l'électromagnétisme. Dans le système SI, les équations de Maxwell (II-17) sont :

$$\begin{aligned} \nabla \times \mathbf{E} &= -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} & \nabla \cdot \mathbf{E} &= \frac{\rho}{\epsilon_0} \\ \nabla \cdot \mathbf{B} &= 0 & \nabla \times \mathbf{B} - \mu_0 \epsilon_0 \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} &= \mu_0 \mathbf{J} \end{aligned} \quad (\text{II-17})$$

Avec :  $\rho$  la densité de charge

$\mathbf{E}$  et  $\mathbf{B}$  les champs électrique et magnétique externes

$$\mu_0 = 4 \pi \cdot 10^{-7} \text{H} \cdot \text{m}^{-1}$$

$$\epsilon_0 = \frac{1}{4\pi \cdot 9 \times 10^9} \text{F} \cdot \text{m}^{-1}$$

Les problématiques ne sont pas les mêmes entre un accélérateur de grande taille, tel que le LHC, et une source scellée. Au LHC, le champ d'accélération est maintenu à environ 1 MV/cm sur une circonférence de 27 km, permettant d'atteindre des énergies de collision pouvant aller jusqu'à 13 TeV.

En revanche, dans les sources scellées, notre objectif est d'atteindre une énergie d'environ 90 keV. À cette énergie, la section efficace de la fusion D/D atteint 14 % de son maximum, tandis que celle de la fusion D/T atteint 92 % de son maximum comme le montre la Figure II-15.

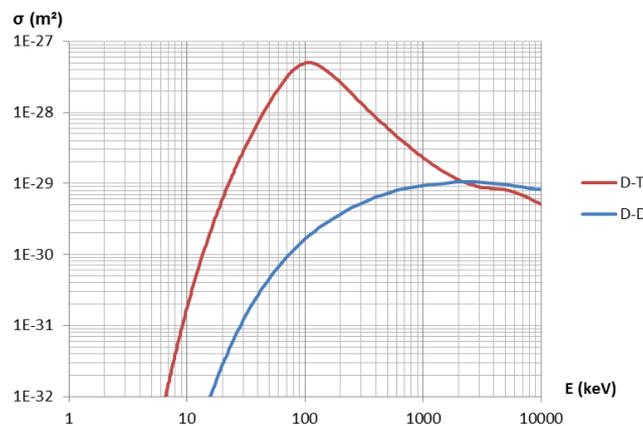


Figure II-15 : Sections efficaces de fusion D-T et T-T

Pour atteindre ce maximum de fusion, les ions sont soumis à une force électrique égale à la valeur de l'énergie au maximum de la section efficace, soit 100 kV. Cette très haute tension permet d'accélérer les ions de basse énergie provenant du plasma tandis que les électrons sont repoussés vers la source.

La génération de neutrons pour toutes les énergies d'ions incidents est donnée par l'intégrale de rendement (II-18) et illustrée sur la Figure II-16 en fonction de l'énergie de l'ion incident :

$$Y = \int_E N \sigma(E) \frac{I}{q} \left[ \frac{d(E)}{dx} \right]^{-1} dE \quad (\text{II-18})$$

Avec :  $N$  la quantité de particules cibles et  $I$  le courant ionique incident

$\left[ \frac{d(E)}{dx} \right]$  le pouvoir d'arrêt de la cible

$q$  la charge de l'ion

$\sigma(E)$  la section efficace de fusion

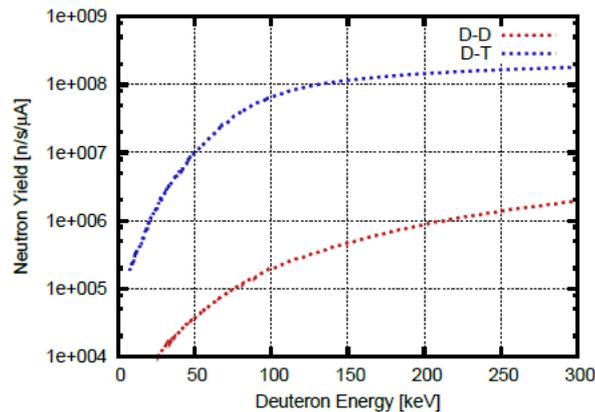


Figure II-16 : Rendement neutronique des réactions de fusion D-T et T-T (Sy A. V., 2013)

Pour un courant ionique constant, le rendement en neutrons D-T augmente rapidement avec l'énergie du faisceau jusqu'à 100 keV, jusqu'au pic de section efficace. Au-delà et jusqu'à 300 keV, l'augmentation est de moins d'un ordre de grandeur du rendement neutronique, la courbe de rendement atteignant essentiellement une saturation au-delà des énergies du faisceau de 300 keV. Les générateurs de neutrons D-T sont donc généralement exploités à des énergies de faisceau autour de 100 keV pour limiter la consommation énergétique qui n'apporte pas un gain réel sur le rendement. Concernant la réaction de D-D, son rendement est de deux ordres de grandeur inférieur à celui du D-T pour le même faisceau incident (à énergie et courant égaux).

Il convient de noter que les courbes de rendement données par la Figure II-16 supposent des faisceaux ioniques de deutérium purement monoatomiques sur une cible de titane entièrement chargée avec des atomes de deutérium ou de tritium (taux d'hydruration égal à 2). Ce sont des hypothèses idéales. Les rendements en neutrons expérimentaux seront légèrement inférieurs en raison de la réduction de l'énergie du faisceau dans la cible ou d'une cible pas parfaitement hydrurée.

#### II.B.4 CIBLE NEUTRONIGÈNE

## II. Source neutronique électrique

La cible, sous forme de pastille, est composée d'un dépôt de matériaux imprégné et d'un substrat. La base de la cible est généralement constituée d'une plaque de cuivre, choisi pour sa résistance, la stabilité de son hydrure, sa conductivité thermique élevée et sa résistance au processus de pulvérisation cathodique. Cette base est ensuite recouverte d'une fine couche de titane, connu pour son adhérence au cuivre, sa stabilité thermique et sa capacité d'imprégnation.

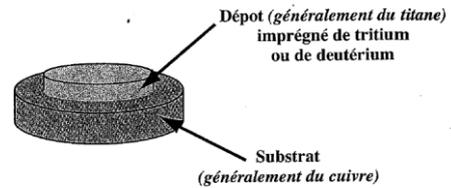


Figure II-17 : Schéma d'une cible neutronigène (CEA Valduc)

La fabrication est décomposée en trois étapes :

- Usinage et préparation (sablage) de surface du substrat pour faciliter l'adhérence ;
- Métallisation par évaporation sous vide ou autre méthode de dépôt de couche mince typiquement de quelques micromètres d'épaisseur ;
- Imprégnation au gaz (hydruration).

Le but est d'obtenir un dépôt homogène et exempt de pollution hydrocarbonée.

Contrairement à des projets comme ITER, où la chaleur est un produit recherché de la réaction de fusion, dans les tubes à neutrons, la chaleur principalement apportée par le bombardement ionique est considérée comme néfaste et doit être évacuée. C'est pourquoi le cuivre est choisi comme matériau de base grâce à son excellente conductivité thermique.

Cela nous permet d'obtenir des flux neutroniques compris entre  $10^8$  et  $10^{13}$  n.cm<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup>. Les caractéristiques neutroniques sont liées aux paramètres propres de la source et à son utilisation. Du côté du faisceau d'ions, il y a l'énergie des particules, le courant et les paramètres géométriques du faisceau (son homogénéité et son diamètre). De l'autre côté, les paramètres de la cible : sa dimension et géométrie, soit la surface de contact avec le faisceau, la quantité d'isotope et l'épaisseur du métal. Ils vont influencer la distribution énergétique des neutrons, le rendement et la fluence.

### II.B.5 INSTRUMENTS ET SYSTÈMES

Si l'on prend l'ensemble des catégories de sources neutroniques vues précédemment et que l'on ne garde que celles transportables, nous constatons que chacune correspond à sa propre application.

Voici un tableau comparatif :

Type de source	Phénomène physique	Énergie des neutrons émis	Débit d'émission neutronique (n.s <sup>-1</sup> )	Avantages	Inconvénients
Source 252Cf	Fission spontanée	Distribution maxwellienne centrée sur 1,45 MeV (Cheol Ho Lee, 2016)	$10^7$ - $10^9$ (diminution par deux au bout de 2,6 ans)	Fiabilité d'utilisation	Impossibilité d'arrêt d'émission Radioprotection accrue pour les travailleurs
Source 241Am Be	Réaction ( $\alpha$ , n)	Plage de 1 MeV- 10 MeV	$10^4$ - $10^8$	Utilisation des particules $\alpha$	

Tube scellée DD	Fusion DD	Monoénergétique 2,5 MeV	$10^6 - 10^8$	Facilité de fabrication	Neutrons de faible énergie
Tube scellée DT	Fusion DT	Monoénergétique 14,1 MeV	$10^7 - 10^{10}$	Faisceau monoénergétique élevé	Utilisation de matière radioactive lors de la fabrication

Tableau II-7 : Comparaison des sources neutroniques scellées

Nous remarquons qu'à débit de neutrons équivalent, nous pouvons utiliser les tubes scellés comme les sources  $^{241}\text{AmBe}$ . Cependant ce dernier émet dans une plage assez large de neutrons. Par la suite, nous allons examiner quelques exemples de tubes neutroniques DD ou DT tirés de documents scientifiques ou vendus dans le commerce, afin de comparer leurs caractéristiques.

Actuellement, les principaux fabricants commerciaux de générateurs de neutrons compacts sont ThermoFisher (USA), Sodern (FRA), VNIIA (RU) et Schlumberger (FRA/USA). Il existe d'autres générateurs fabriqués par des universités ou des laboratoires nationaux comme le groupe Plasma and Ion Source Technology (P&IST) au Lawrence Berkeley National Laboratory qui développe des générateurs de neutrons DD haute puissance.

Pour la suite, nous allons nous concentrer sur le tube neutronique fabriqué par Sodern.

## II.B.6 CAS PARTICULIER DES TUBES SCELLÉS ÉQUIPÉS D'UNE SOURCE D'IONS DE PENNING

### II.B.6.1 Tube Sodilog

L'entreprise Sodern a été créée en 1962 pour satisfaire un besoin de l'Etat : concevoir et réaliser les sources neutroniques nécessaires à la force française de dissuasion. Tournée à l'origine vers un seul client, le CEA/DAM, l'activité de Sodern s'est progressivement élargie à différents secteurs dont notamment le spatial.

Pour son activité de neutronique civil, Sodern développe des tubes neutroniques qui se déclinent sous plusieurs configurations selon leur utilisation : pour le forage pétrolier, dans un CNA (*Controlled Neutron Analyzer*), un dispositif de contrôle de matière en usine à destination notamment de l'industrie du ciment, et également au sein de dispositifs de contrôle à but sécuritaire, comme la détection d'explosifs. Sur cette activité d'analyse de matière, Sodern est actuellement numéro 2 mondial. Pour le militaire, le tube neutronique est intégré dans le processus de dissuasion nucléaire française afin de catalyser la réaction en chaîne de l'étage à fission de la bombe. Cette dualité défense/civil permet d'encourager les synergies entre les différents programmes.

## II. Source neutronique électrique

Tous les générateurs de neutrons fabriqués et commercialisés par Sodern pour des applications dites « civiles » sont équipés d'une source d'ions à cathode froide de type Penning. Nous allons maintenant mettre l'accent sur le tube Sodilog, utilisé dans la prospection pétrolière. Il s'agit d'un tube d'un pouce de diamètre sur une longueur de 27 cm, tel que représenté dans la Figure II-18. Il est utilisé selon plusieurs modes en fonction de son application, appelés C/O ou Génie 16, comme indiqué dans le Tableau II-8.



Figure II-18 : Tube Sodilog

Séquenceur	Tension accélératrice	Tension anode	Taux travail source d'ions	Courant moyen sur la cible	Taux de travail neutrons	Courant max dans la source
Génie 16 200 $\mu$ s/2000 $\mu$ s	-90 kV	2 kV	10 %	70 $\mu$ A	9 %	2,7 mA
C/O 55 $\mu$ s/200 $\mu$ s	-80 kV	2 kV	28 %	80 $\mu$ A	13 %	1,8 mA

Tableau II-8 : Mode d'émission pulsée du tube Sodilog

En se concentrant sur les caractéristiques du pulse, lors de la mise sous tension, correspondant à la courbe rose de la Figure II-19, le potentiel à l'anode prend quelques microsecondes pour atteindre la valeur de consigne  $V_{anode}$ . Pendant ce temps, la décharge des électrons commence à s'amorcer. Après une durée variable pour chaque tube, les ionisations deviennent suffisamment nombreuses pour créer un courant dans la source d'ions.

Ce courant augmente considérablement pendant plusieurs microsecondes jusqu'à atteindre une valeur relativement élevée d'environ quelques milliampères (régime stationnaire). À chaque pulse, le courant dans la source d'ions s'établit donc avec un retard par rapport à l'amorçage. Cela entraîne un retard dans l'extraction des ions de la source d'ions. De manière similaire, à la fin de chaque pulse, le courant de la source d'ions diminue avec un léger retard par rapport au pulse de tension.

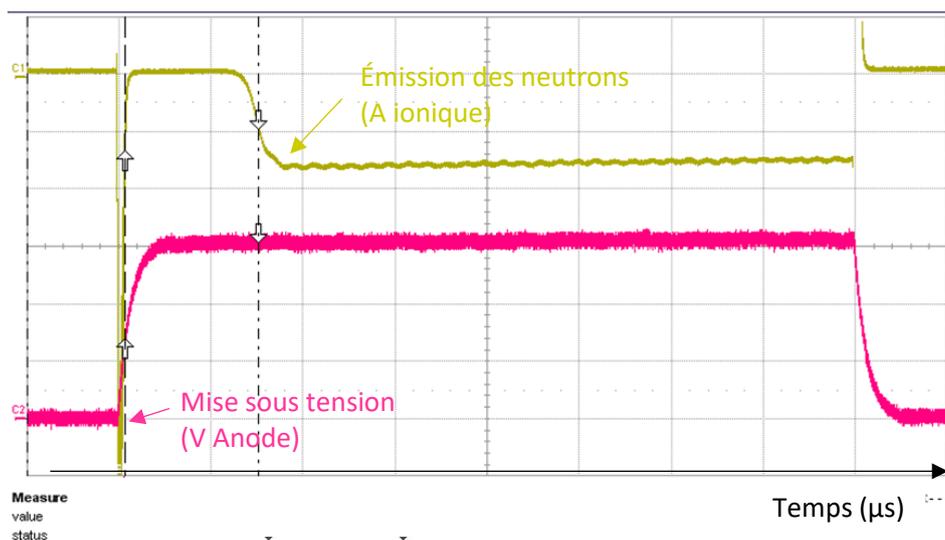


Figure II-19 : Mesures du courant dans la source d'ions en jaune lors d'une impulsion de haute tension (en rose) pour un tube à neutrons Sodilog

Les mesures expérimentales pour le tube à neutrons Sodilog donnent une durée importante de l'ordre de 20 à 30  $\mu\text{s}$ . Cette durée s'explique par un retard à l'amorçage du plasma dû à la mise en place de la haute tension, soit environ 15 à 20  $\mu\text{s}$ , et par le temps d'établissement du régime stationnaire du plasma estimé à environ 6 à 8  $\mu\text{s}$ .

A cela s'ajoute un jitter, un phénomène de fluctuation de ce retard alors que le signal d'entrée est fixe. Il va augmenter le temps de retard jusqu'à 10  $\mu\text{s}$  et donc de fait, faire diminuer et varier, la quantité de neutrons émis pour chaque pulse.

### II.B.6.2 Amélioration des performances

Récemment, Sodern a mené une enquête technologique pour identifier des améliorations possibles de son tube en suivant les spécifications présentées dans le Tableau II-9. Étant donné que la source d'ions est l'un des éléments majeurs influençant le temps d'émission, des efforts ont été déployés pour améliorer celui-ci en ajoutant à cette dernière une source externe d'électrons.

Famille	Spécification	Critère
Courant du faisceau ionique (Émission neutronique)	Temps de montée et de descente	< 1 $\mu\text{s}$
	Temps de déclenchement	< 3 $\mu\text{s}$
	Jitter	< 1 $\mu\text{s}$
	Largeur minimale de l'impulsion	5 $\mu\text{s}$
	Amplitude (pic à un rapport cyclique de 4%)	> 2 mA
Système/Dimensionnel	Maximal OD	< 20 mm
	Consommation électrique de la source d'ions	< 10 W
	Pression du gaz de travail	$10^{-3} - 10^{-4}$ mbar
	Durée de vie	> 1000 h
Environnement	Environnement Température de fonctionnement maximale	> 175°C
	Vibration/Choc	N/A

Tableau II-9 : Spécification d'amélioration du tube Sodilog

Pour le chapitre III. Source d'électrons, nous allons voir plus en détail la physique d'émission d'électrons et les applications pouvant être intégrées à une source d'ions.





Une source d'électrons désigne tout dispositif, matériau ou système capable de libérer des électrons. Pour ce faire, le dispositif doit fournir une quantité d'énergie suffisante pour rompre la liaison qui maintient l'électron autour du noyau de l'atome. Selon le type d'énergie fournie, différents types d'émissions physiques sont distingués, parmi lesquels l'émission thermoïonique, l'émission photoélectrique ou l'émission par effet de champ. Ces trois phénomènes seront présentés dans la première partie de ce chapitre. Nous nous concentrerons ensuite sur les nanotubes, des matériaux utilisant à la fois l'émission de champ et l'effet de pointe pour émettre des électrons. Enfin, nous aborderons les applications de ces nanotubes au cœur des sources d'ions et neutroniques.

## III. SOURCE D'ÉLECTRONS

---

### A. PHYSIQUE

De manière plus spécifique, les sources d'électrons les plus communes se composent :

- D'un matériau, le plus souvent solide, dont l'interface avec le vide est soumise à une ou plusieurs excitations (chauffage, champ électrique, bombardement corpusculaire...);
- D'un plasma.

L'énergie des électrons est intrinsèque à l'excitation et, le plus souvent, amplifiée grâce à sa géométrie, où l'émetteur, appelé cathode, est positionné face à une électrode appelée anode. L'anode est maintenue à un potentiel accélérateur et est capable de former un ensemble cohérent d'électrons en mouvement, appelé faisceau. Pour la suite, nous allons voir les trois principaux processus d'émission électronique : l'émission thermoïonique, l'émission photoélectrique et l'émission de champ.

#### III.A.1 ÉMISSION THERMOÏONIQUE

Ce type d'émission se produit lorsque des électrons sont émis à partir d'un matériau en raison de son échauffement. Les électrons acquièrent suffisamment d'énergie thermique pour surmonter la barrière de potentiel de la surface et s'échapper.

Pour comprendre ce phénomène, il est utile de rappeler brièvement que, pour un atome isolé, les électrons orbitent autour du noyau. L'énergie  $w_i$  nécessaire pour libérer un électron, situé à une distance  $x$  du noyau, de l'attraction de ce dernier peut être schématisée par la Figure III-1. L'électron est dit "prisonnier" dans un puits d'énergie ou de potentiel.

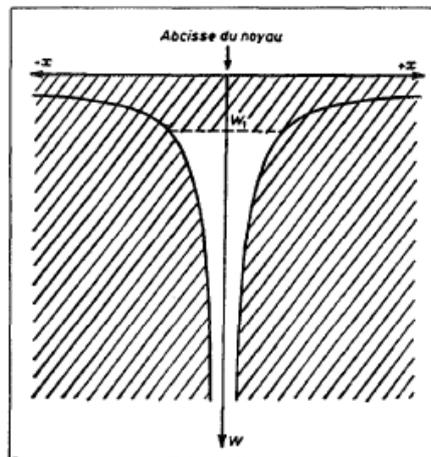


Figure III-1 : Puits de potentiel de l'attraction d'un électron par le noyau (J.Arianer, 1997)

Selon la théorie des bandes, un ou deux électrons par atome dans un solide sont libres de se déplacer d'un atome à l'autre. On se réfère parfois à cela collectivement comme une "mer d'électrons". Leurs vitesses suivent une distribution statistique plutôt qu'une distribution uniforme et, de temps en temps, un électron aura suffisamment de vitesse pour sortir du métal sans être rappelé. La quantité minimale d'énergie nécessaire pour qu'un électron quitte une surface est appelée la fonction de travail.

En 1901, Richardson publia les résultats de ses expériences : le courant provenant d'un fil chauffé semblait dépendre exponentiellement de la température du fil. Celui-ci sera traduit en équation via la loi de Dushman :

$$J = AT^2 \exp\left(\frac{-\phi_s}{kT}\right) \quad (\text{III-1})$$

Avec :  $J$  le courant de densité électronique en  $\text{A}\cdot\text{m}^{-2}$  ;

$A$  la constante de Richardson-Dushman qui en pratique est dépendante du matériau à cause de facteur correctif  $\lambda_R$  en  $\text{A}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{K}^{-2}$  ;  $A = \lambda_R A_0$  ;

$A_0$  une constante égale à  $1,2 \times 10^6 \text{ A}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{K}^{-2}$

$k$  la constante de Boltzmann égale à  $1,38 \times 10^{-23} \text{ m}^2\cdot\text{kg}\cdot\text{s}^{-2}\cdot\text{K}^{-1}$

$T$  la température en K ;

$\phi_s$  le travail de sortie de l'émetteur, soit l'énergie nécessaire pour un électron de quitter le matériau en eV.

En 1930, il était convenu que, en raison de la nature ondulatoire des électrons, une certaine proportion  $r_{av}$  des électrons sortants serait réfléchié lorsqu'ils atteindraient la surface émettrice. Ainsi, la densité actuelle d'émission serait réduite, et  $\lambda_R$  aurait la valeur  $1 - r_{av}$ . On voit donc parfois l'équation d'émission thermoionique écrite sous la forme :

$$J = (1 - r_{av})A_0T^2 \exp\left(\frac{-\phi_s}{kT}\right) \quad (\text{III-2})$$

Les sources thermoioniques dites chaudes ont l'avantage d'avoir une puissance par unité de surface beaucoup plus élevée que les autres types de cathodes. Un second avantage est de pouvoir travailler avec une tension de seuil faible qui se traduit par un fonctionnement à faible puissance, ce qui permet une longue durée de vie, une luminosité élevée et la génération de faisceaux d'électrons cohérents. Toutefois elles présentent trois inconvénients pour nos applications : une tension de seuil élevée, une augmentation de la température et une forte pollution du milieu.

### III.A.2 EFFET PHOTOÉLECTRIQUE

En 1887, Heinrich Hertz découvre l'effet photoélectrique, mais ce n'est qu'en 1905 (Einstein, 1905) qu'Albert Einstein relie ce phénomène à la mécanique quantique, recevant ainsi le prix Nobel de physique en 1921. L'effet photoélectrique peut être compris comme l'émission d'électrons d'une surface métallique sous l'impact de photons. Un électron, initialement dans les états occupés du métal, est excité par un photon d'énergie  $E = h\nu$ , et s'il acquiert une énergie suffisante pour dépasser le travail de sortie  $\phi_s$ , il est émis avec une énergie cinétique  $E_k = h\nu - \phi_s$ .

Cependant, avec des lasers femtosecondes utilisant des longueurs d'onde dans le visible ou l'infrarouge, l'effet photoélectrique à photon unique n'est pas réalisable. Le paramètre de Keldysh  $\gamma$  (Keldysh, 1965) est introduit pour décrire deux mécanismes de photoémission principaux lors d'une illumination laser intense. Le régime multiphotonique où  $\gamma \gg 1$ , est caractérisé par un courant

proportionnel à l'intensité lumineuse à la puissance  $\frac{\phi_s}{h\nu}$  soit le nombre de photons minimum nécessaire à l'électron pour franchir le travail de sortie. Le régime d'émission par champ optique ( $\gamma \ll 1$ ) une émission par effet tunnel à travers la barrière de potentiel.

Le paramètre de Keldysh  $\gamma$  dépend du matériau et est défini par l'équation (III-3) :

$$\gamma = \sqrt{\frac{\phi_s}{2U_p}} \quad (\text{III-3})$$

Avec :  $U_p$  l'énergie cinétique moyenne d'un électron de charge  $e$ , appelé énergie pondéromotrice

L'émission multiphotonique au-dessus du seuil (ATP) est rendue possible avec des lasers femtosecondes en concentrant de nombreux photons sur un temps très court, augmentant ainsi la probabilité d'absorber plusieurs photons avant la relaxation du système. Ce phénomène se caractérise par des pics dans les spectres d'énergie des électrons émis, séparés par l'énergie d'un photon.

L'émission par champ optique et recollision est activée à des intensités lumineuses plus élevées, où le laser n'est plus considéré comme une perturbation photonique. L'électron émis subit une recollision avec la cathode, pouvant entraîner des phénomènes tels que la collision élastique ou la recombinaison radiative, émettant des photons à haute énergie (HHG). Le modèle à trois étapes de Paul Corkum synthétise ce processus.

Le dernier type de source d'électrons est la source par effet de champs que nous allons pouvoir expliquer plus en détail dans le chapitre suivant.

#### *B. EFFET DE CHAMPS*

L'émission de champ est une émission d'électrons induite par un champ électrostatique. Le contexte le plus courant est l'émission de champ d'une surface solide (métal froid) dans le vide. C'est en 1897 que le physicien Wood en donne une première description (W.Wood, 1897), théorisée par Schottky en 1923 (Schottky, 1923) puis par Fowler et Nordheim en 1928 (Fowler, 1928). Le principe de l'émission électronique par effet de champ repose sur des hypothèses concernant les changements de la barrière de potentiel monodimensionnelle de surface avec un champ accélérateur mis en avant par la découverte de la physique quantique.

En physique quantique, les électrons sont considérés à la fois comme un corpuscule et comme une onde pour lesquels on ne peut en même temps connaître la position et l'énergie. L'électron possède alors une fonction d'onde, c'est-à-dire une probabilité de présence. C'est cet effet qui utilise les propriétés ondulatoires des électrons pour expliquer le franchissement de la barrière de potentiel en faisant appel à la notion de fonction d'onde.

Avec un champ d'accélération nul, la barrière est infiniment épaisse ; les électrons ne peuvent pas pénétrer la barrière ni s'échapper sauf s'ils ont une énergie suffisamment élevée. Avec un champ accélérateur, la barrière devient plus mince, il y a alors une probabilité finie qu'un électron s'échappe par effet tunnel.

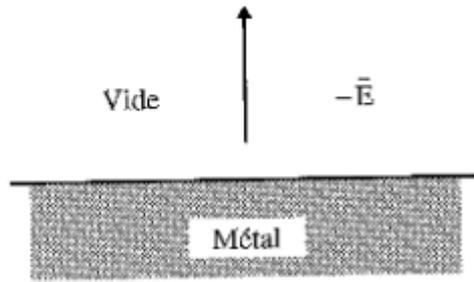


Figure 1

Schéma d'une interface idéale

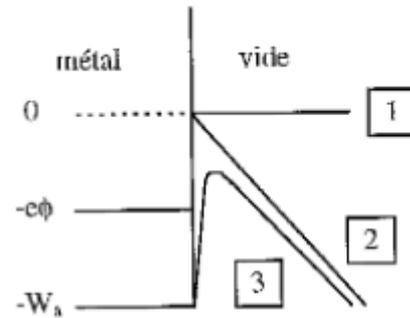


Figure 2

Barrière de potentiel : (1) sans champ, (2) avec champ, (3) avec champ et force image

Figure III-2 : Schéma d'une barrière de potentiel entre un métal et le vide (Luong, 1997)

### III.B.1 MODÈLE DE FOWLER-NORDHEIM

En 1928, Fowler et Nordheim (Fowler, 1928) ont proposé une relation reliant la densité de courant électrique  $J$  au champ électrique  $E$  d'une surface plane :

$$J_{F-N}(F) = 1,42 \times 10^{-6} \exp\left(\frac{10,4}{\sqrt{\phi_s}}\right) \frac{|E|^2}{\phi} \exp\left(-6,56 \times 10^9 \frac{\phi^{\frac{2}{3}}}{|E|}\right) \quad (\text{III-4})$$

Avec :  $J_{F-N}$  la densité du courant en  $\text{A}\cdot\text{m}^{-2}$  ;

$E$  le champ électrique en  $\text{V}\cdot\text{m}^{-1}$  ;

$\phi_s$  le travail de sortie en eV.

Le courant est donné en multipliant par la surface  $S$  en  $\text{m}^2$  :  $I(F) = S \times J_{F-N}(F)$  (III-5)

On retrouve en Annexe VIII.B, la démonstration complète ainsi que des discussions sur la charge d'image et la dispersion énergétique qui en découle. Ce modèle décrit un émetteur plan. On constate qu'une optimisation sensible de l'émission est possible par un changement de géométrie. En effet, pour éviter d'appliquer un champ électrique trop intense, les cathodes à émission de champ profitent d'un autre phénomène bien connu : l'effet de pointe.

### III.B.2 EFFET DE POINTE

L'effet de pointe est le nom donné à l'accumulation des charges électriques au niveau d'une zone pointue de la surface d'un conducteur électrique provoquant un fort champ électrique. Ce phénomène est par exemple utilisé pour les paratonnerres pour avoir le champ électrostatique le plus élevé en haut de la pointe et ainsi former un arc électrique à cet emplacement (le milieu le moins résistif).

Ce phénomène est directement déduit de l'application du Théorème de Gauss pour une sphère de rayon  $r$  :

$$E(r) = \frac{Q}{\epsilon_0 4\pi r^3} \quad (\text{III-6})$$

Avec :  $E$  le champ électrique en  $\text{V}\cdot\text{m}^{-1}$  ;

$Q$  la charge en C ;

$\epsilon_0$  la permittivité diélectrique du vide ( $8,85 \times 10^{-12} \text{ F}\cdot\text{m}^{-1}$ ) ;  
 $r$  le rayon de la sphère m.

Avec la relation entre le champ et le potentiel électrique  $V$  :

$$E(r) = -\text{grad}(V) \quad (\text{III-7})$$

Soit :

$$V(r) = \frac{Q}{\epsilon_0 4\pi r} \quad (\text{III-8})$$

La relation entre  $E(r)$  et  $V(r)$  en éliminant la charge, on obtient à la surface de la sphère :

$$E(r) = \frac{V(r)}{r} \quad (\text{III-9})$$

On obtient donc, pour un potentiel donné, un champ électrique inversement proportionnel à la taille du rayon de la sphère. Plus celle-ci est petite, plus le champ augmentera à cet emplacement.

On utilise une pointe possédant un fort facteur de forme (rapport entre la hauteur et la largeur) et, dans ce cas, le champ local au bout de la pointe est égal au champ appliqué multiplié par un facteur d'amplification qui dépend de la géométrie de la pointe. On peut ainsi émettre des électrons pour des champs appliqués raisonnables.

$$E_{\text{local}} = \beta \times E_{\text{appliqué}} \quad (\text{III-10})$$

Ce facteur a été étudié de nombreuses fois pour les nanotubes de carbone (X.Q.Wang, 2004; C.J.Edgcombe, 2001), l'expression de  $\beta$  la plus communément utilisée pour une cathode plane est celle de C.J.Edgcombe et U. Valdrè :

$$\beta = 1,125 \left( \frac{h}{r} + 2 \right)^{0,91} \quad (\text{III-11})$$

Avec :  $h$  la hauteur ;  
 $r$  le diamètre.

Typiquement,  $\beta$  est expérimentalement de 3000 à 5000 pour un nanotube multi-parois individuel et inférieur à 300 pour un film de nanotubes (J.M.Bonard, 1997). Le facteur  $\beta$  est à utiliser avec précaution car les valeurs obtenues dépendent considérablement de la configuration expérimentale, notamment de la distance inter-électrodes.

#### 1.1.1.1 Comparaison des processus d'émission

Le Tableau III-10 fournit une analyse comparative des trois principaux processus d'émission électrique que nous avons examinés précédemment. Chaque processus présente ses propres avantages et inconvénients, ce qui influe sur leur application. Par exemple, l'effet thermoïonique est utilisé dans toutes les cellules photovoltaïques, tandis que l'émission thermoïonique est le processus que l'on retrouve dans les ampoules à incandescence.

Processus d'émission	Mécanisme	Expression	Avantages	Limitations
Émission thermoïonique	Chauffage du matériau	Loi de Dushman	Puissance élevée par unité de surface, luminosité élevée, longue durée de vie, production de faisceaux cohérents	Seuil d'émission, augmentation de la température, pollution
Émission de champ	Champ électrostatique externe	Loi de Fowler Nordheim	Possibilité d'optimisation géométrique, fonctionnement à des champs électriques raisonnables	Seuil d'émission, nécessité d'une géométrie adaptée pour une émission optimale
Émission photoélectrique	Impact de photons sur une surface métallique	N/A	Production de courant proportionnelle à l'intensité lumineuse, possibilité d'émission multiphotonique, émission par champ optique	Limité par le nombre de photons absorbés, nécessité des photons suffisamment énergétiques pour émettre des électrons

Tableau III-10 : Comparatif des processus d'émission électronique

Sodern envisage actuellement l'ajout d'une source par effet de champs dans les sources d'ions de certains tubes neutroniques civils. Cette décision découle de la comparaison des différentes théories d'émission que l'on retrouve dans le Tableau III-11. Alors que les cathodes thermoïoniques offrent une stabilité d'émission élevée une fois que la température de l'émetteur est stabilisée, elles peuvent nécessiter une dissipation thermique plus importante et entraîner une pollution potentielle du vide. En revanche, les sources par effet de champs sont connues pour leur plus grande durée de vie, car l'émission peut être répartie sur un ensemble de micro-sources tout en présentant une dispersion énergétique très faible. Ces sources offrent des avantages thermiques et conductifs, comme nous verrons par la suite.

Théorie d'émission	Dépendance aux vides	Durée de vie	Dispersion énergétique	Stabilité d'émission	Contamination
Émission thermoïonique	-	- On/Off		++	++ Particules de tungstène, oxyde de baryum
Émission de champ	-	++	-- - de 0,5 eV	- Dépendance au champ électrique	+ Carbone

Tableau III-11 : Comparatif des processus d'émission électronique pour l'application d'une source d'ions

Nous allons maintenant nous pencher sur les sources à effet de champs disponibles.

III.B.3 SOURCE À EFFET DE CHAMPS

III.B.3.1 Micro pointe

Les premières cathodes froides à émission de champ à avoir vu le jour sont les cathodes de type Spindt en 1968 (CA.Spindt, 1968). Ce sont des micropointes, sous forme de cônes en molybdène, intégrées avec leurs électrodes d'extraction (Figure III-3). Leur fabrication a été peu à peu arrêtée en raison de leur émission électronique extrêmement sensible à la géométrie de chaque pointe (ce qui engendrait une uniformité d'émission difficile à maîtriser) et du phénomène d'érosion dû aux hautes tensions d'accélération demandées pour leur application dans des écrans de type FED.

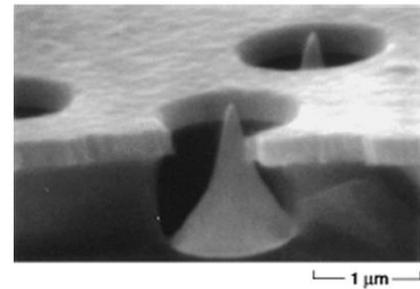


Figure III-3 : Image MEB d'une cathode Spindt

Ils ont progressivement disparu et de nouvelles cathodes froides sont arrivées sur le marché utilisant notamment les propriétés émissives des nanotubes de carbone.

III.B.3.2 Velours

Le velours est utilisé comme source d'électron dans l'application EPURE du CESTA (Pepitone, 2014). Les images Tcherenkov présent sur la Figure III-4 montrent que le velours noir, avec des fibres bien ordonnées, présente des points lumineux, petits et nombreux, rendant son faisceau d'électrons visuellement homogène. Cependant, comme le montre Pepitone (Pepitone, 2014), le seuil d'émission du velours est assez élevé. Pour sa source, le seuil est de -31 kV et atteint -75 kV pour extraire un courant de -0,75 kA.

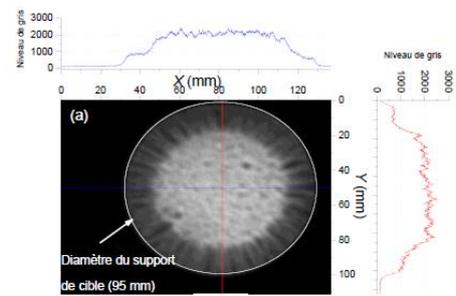


Figure III-4 : Image Cerenkov de tir avec une cathode en velours (Pepitone, 2014)

III.B.3.3 Nanofibre de carbone

Connu jusqu'alors uniquement sous forme de graphite et de diamant, c'est en 1985 que le carbone sous forme de fullerènes est découvert par Harold Kroto ce qui lui valut le Prix Nobel de Chimie en 1996 (H.W. Kroto, 1985). Similaire à du graphène, il est composé de feuilles d'atomes de carbone liés par liaison covalente contenant des anneaux hexagonaux mais aussi pentagonaux provoquant une courbure de la feuille et permettant d'obtenir différentes formes géométriques (sphérique - voir Figure III-5, ellipsoïdal, anneau...).



Figure III-5 : Représentation d'une molécule de fullerène C60

En 1989, un premier brevet est déposé sur des nanofibres de carbone. Cette formation de carbone était observée très fréquemment lors de la décomposition d'hydrocarbure mais elle était considérée comme une nuisance en détruisant du catalyseur. Ce n'est que bien plus tard que l'on s'est intéressé à ses applications et au développement des méthodes de synthèse catalytique de ces nanofibres et autres structures carbonées.

### C. NANOTUBES DE CARBONE

L'origine de la découverte des nanotubes de carbone est plus ou moins méconnue, elle en a même fait l'objet d'une publication (Marc Monthieux, 2006) mais il semblerait que leur première observation date de 1952 (L.V. Radushkevich, 1952).

La publication de Sumio Iijima en 1991 (Iijima, 1991) fut le point de départ de la recherche et de l'intérêt porté sur les nanotubes. Il synthétisa des fullerènes par arc électrique et observa, lors de son analyse par microscope électronique à transmission (MET), un matériau extrêmement fin en forme d'aiguille en carbone qu'il nomma nanotube de carbone. Ce matériau a une structure tubulaire de nappes d'atomes de carbone, cela correspond à des feuilles de graphène roulées mono ou multicouches, de dimension macroscopique dans une direction et de taille nanométrique dans les deux autres. Lors de sa première observation, S. Iijima synthétisa des nanotubes multi-feuillets et c'est en 1993 qu'il obtint des nanotubes mono-feuillets développés en phase gazeuse d'un nanomètre de diamètre (S.Iijima, 1993).

Les nanotubes de carbone ont attiré de nombreux chercheurs dans différents domaines allant du monde universitaire à l'industrie, non seulement en raison de leur caractère unique par rapport aux matériaux conventionnels, mais aussi parce qu'ils constituent des matériaux très prometteurs en nanotechnologie pour des technologies futures.

À partir de 1998, la perspective d'utiliser des nanotubes dans des dispositifs à émission de champ a stimulé des efforts dans le monde entier : un premier affichage (Q.H.Wang, 1997) ainsi que plusieurs autres recherches (Y.Saito K. R., 1999), (Y.Saito S., 2000)) ont mis en avant l'utilisation des nanotubes pour l'émission d'électrons. Un réel engouement industriel s'est accru ces dernières années en raison de l'utilisation des nanotubes dans deux produits : élément luminescent à haute luminosité et tube à rayons X. Ils présentent plusieurs avantages quant à leur utilisation : augmentation de la conductivité électronique et/ou thermique, rapport d'aspect élevé, allégement de la structure générale et grande résistance mécanique.

#### III.C.1 STRUCTURE DES NANOTUBES DE CARBONE

Par définition, les nanotubes de carbone sont composés d'un ou plusieurs feuillets d'atomes de carbone enroulés sur eux-mêmes en forme de tube. Ils sont classés en CNT à simple paroi (SWCNT pour Single-Walled Carbon Nanotube) ou CNT à parois multiples (MWCNT pour Multi-Walled Carbon Nanotube) en fonction du nombre de couches de feuilles de graphène.

##### III.C.1.1 Simple paroi (SWNT)

Découverts en 1993, ils ont été étudiés par diffraction d'électrons à aire sélectionnée pour comparer les mesures de transport (SAED) (E. Thune D. Preusche C. Strunk H.T. Ma, 2006). Parce qu'il n'y a qu'une seule couche de graphène dans les SWCNT, leur plage de diamètre est plus petite que celle des MWCNT. Plus complexes à la fabrication, ils nécessitent l'utilisation d'un ou plusieurs catalyseurs. Ils peuvent être considérés comme des découpes d'un réseau hexagonal bidimensionnel d'atomes enroulés le long d'un des vecteurs de réseau de Bravais pour former un cylindre creux.

Leurs propriétés dépendent significativement de la direction dans laquelle les feuilles de graphène sont enroulées en cylindre, appelée chiralité ou hélicité du CNT.

Le diamètre et l'hélicité d'un SWCNT, sans défaut, sont caractérisés par le vecteur  $C = na_1 + ma_2$ , appelé vecteur de roulage (ou d'enroulement), qui relie les sites cristallographiquement équivalents sur la feuille de graphène bidimensionnelle. On retrouve en Annexe 0 plus de détails sur la chiralité des nanotubes.

Lors de leur culture, les CNT à simple paroi ont une dispersion de chiralité et de diamètre décrivant différents types de nanotubes :

- Chaise : le repliement se fait autour d'une direction perpendiculaire aux liaisons carbone-carbone ;
- Chiral : nanotube général avec une symétrie inférieure au nanotube chaise ;
- Zig zag : le repliement se fait parallèlement aux liaisons carbone-carbone.

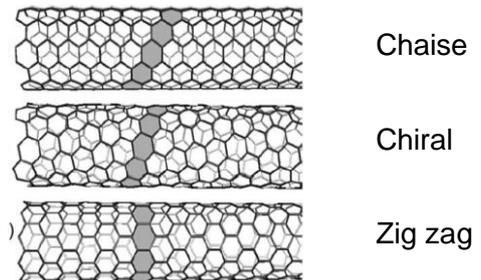


Figure III-6 : Illustration des 3 types de CNT avec en gris l'hélice autour du nanotube (C. Thomsen, 1970)

### III.C.1.2 Multi-parois (MWNT)

Les nanotubes de carbone multi-parois (MWCNT) correspondent à plusieurs nanotubes de carbone à paroi unique imbriqués les uns dans les autres comme le montre la Figure III-7. Il peut y avoir de 6 ou jusqu'à 25 parois concentriques (Silvy). Les diamètres des MWNTs peuvent donc aller jusqu'à 100 nm, contre 0,7 à 2 nm pour les SWNTs. Pour les MWCNT avec des diamètres typiques entre 7 et 100 nm, le rapport longueur-diamètre est généralement compris entre 50 et 4 000. Avec des parois à simple couche seulement, les SWCNT sont encore plus minces (0,5 à 2,5 nm) et en raison de cela, leur rapport longueur-diamètre est généralement plus grand et atteint souvent jusqu'à 10 000.

Ce type de nanotube est toujours métallique car la conduction des électrons se fait constamment dans le feuillet externe. Ainsi, même une faible quantité de MWCNTs mélangée à des matériaux normalement isolants peut leur conférer une conductivité.

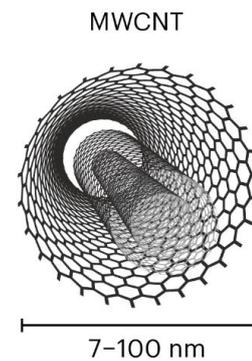


Figure III-7 : Représentation schématique de nanotubes MWCNT

### III.C.1.3 Hybridation du carbone

La géométrie et la nature des liaisons dans les nanotubes s'expliquent par le phénomène d'hybridation du carbone. La structure électronique de l'atome de carbone, avec 6 électrons qui occupent les orbitales atomiques  $1s^2$ ,  $2s^2$  et  $2p^2$ , ne permet pas d'expliquer la formation de liaison avec trois autres atomes. L'orbital  $1s^2$  contient deux électrons de cœur fortement liés. Quatre autres électrons faiblement liés occupent les orbitales de valence  $2s^2$  et  $2p^2$ . Dans la phase cristalline, les électrons de valence donnent naissance aux orbitales  $2s$ ,  $2p_x$ ,  $2p_y$  et  $2p_z$  qui sont importantes dans la formation de liaisons covalentes dans les matériaux carbonés. Comme la différence d'énergie entre les niveaux d'énergie  $2p$  supérieurs et le niveau  $2s$  inférieur du carbone est faible par rapport à l'énergie des liaisons chimiques, les fonctions d'onde électroniques de ces quatre électrons peuvent se mélanger facilement les unes aux autres, modifiant ainsi l'occupation des orbitales atomiques  $2s$  et  $2p$  pour augmenter l'énergie de liaison de l'atome de carbone avec ses atomes voisins. Le mélange général des orbitales atomiques  $2s$  et  $2p$  est appelé hybridation. Ainsi, trois hybridations possibles se produisent

dans le carbone,  $sp$ ,  $sp^2$  et  $sp^3$ , que l'on retrouve illustré dans la Figure III-8, et qui permettent de mieux décrire qualitativement les liaisons entre atomes :

- Hybridation  $sp$  : Cet état d'hybridation permet la formation d'une triple liaison. Une orbitale  $s$  et une orbitale  $p$  se combinent pour former 2 orbitales  $sp$  situées sur le même axe. Elles permettent la formation des liaisons  $\sigma$ , tandis que les 2 orbitales  $p$  non hybridées complètent la triple liaison par recouvrement latéral et formation de 2 liaisons  $\pi$ . La molécule formée est linéaire et rigide, avec aucune rotation possible autour de la triple liaison.
- Hybridation  $sp^2$  : Cet état permet la formation des doubles liaisons par recouvrement latéral des orbitales  $p$  non hybridées. Les 3 orbitales hybridées  $sp^2$  sont coplanaires (dans le même plan) et forment entre elles un angle de  $120^\circ$ . Un exemple est l'éthène ( $C_2H_4$ ), où le recouvrement axial de 2 orbitales  $sp^2$  forme une simple liaison  $\sigma$  et le recouvrement latéral une double liaison  $\pi$ . La molécule est donc plane et rigide, avec une rotation autour de l'axe  $C=C$  impossible.
- Hybridation  $sp^3$  : Les orbitales  $p$  et  $s$  de la couche externe du carbone se recombinent pour former 4 orbitales hybridées  $sp^3$ . La géométrie de cet état d'hybridation est un tétraèdre, avec un angle de liaison de  $109,28^\circ$ . Un exemple est le méthane ( $CH_4$ ), où le carbone forme 4 liaisons simples avec 4 atomes d'hydrogène par recouvrement des 4 orbitales  $sp^3$  avec les orbitales  $1s$  de l'hydrogène.

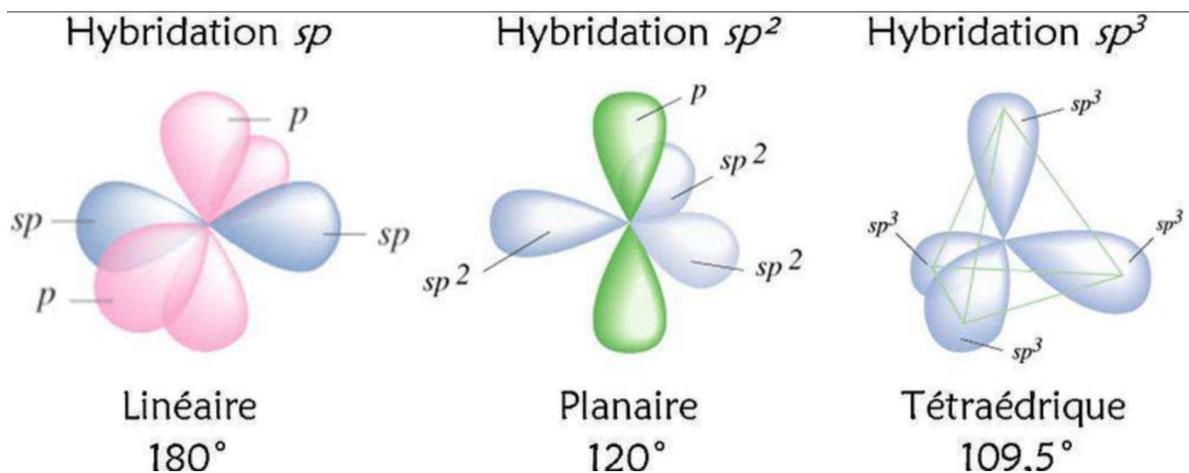


Figure III-8 : Forme idéale des orbitales hybridées  $sp$ ,  $sp^2$  et  $sp^3$  (Castro, 2009)

Nous pouvons nous attendre à ce que la liaison  $sp^2$  planaire caractéristique du graphite soit les seuls présents dans les nanotubes de carbone. Cependant la courbure des nanotubes mélange une petite quantité de liaison  $sp^3$  de sorte que les constantes de force (liaison) dans la direction circonférentielle soient légèrement plus faibles que le long de l'axe du nanotube. Dans une représentation idéale, le nanotube est terminé à chacune de ses extrémités par un demi-fullerène de liaison  $sp^3$ .

### III.C.2 SYNTHÈSE DES NANOTUBES DE CARBONE

La synthèse des nanotubes de carbone s'effectue selon deux familles de processus :

- à haute température et à pression élevée avec une évaporation d'un allotrope du carbone dans un gaz rare (souvent hélium ou argon) ;
- à moyenne température, appelée CVD (Chemical Vapor Deposition).

#### III.C.2.1 Méthode d'arc électrique

Cette méthode a été décrite pour la première fois par Iijima (Iijima, 1991). Elle repose sur l'utilisation d'un arc électrique établi entre deux électrodes en graphite dans une enceinte remplie d'un gaz inerte à basse pression. Le carbone est sublimé au niveau de l'anode contenant également des catalyseurs. Pour garder une distance inter-électrode constante, l'anode consommable se déplace en continu. Au cours du processus, un dépôt de nanotubes se forme sur la cathode. Cette méthode connaît de nombreuses variantes selon le type de catalyseurs (nickel, cobalt...), la nature du gaz (hélium, hydrogène, azote) ou la position des électrodes. Cette méthode a l'avantage premier d'être simple et peu coûteuse à réaliser tout en contrôlant plusieurs paramètres (pression, distance inter-électrode, matériaux...). *Elle permet un rendement de 40% à 60% des produits recueillis.*

#### III.C.2.2 Méthode d'ablation laser (PDL)

Elle a été décrite pour la première fois en 1996. Un faisceau laser pulsé est focalisé sur une cible constituée de graphite et de catalyseurs métalliques (très souvent du cobalt et du nickel). L'interaction cible-faisceau entraîne l'arrachage du graphite constituant la cible par évaporation et il y a formation de nanotubes. À l'aide d'un flux de gaz inerte, ce condensat de graphite est déplacé jusqu'au collecteur en cuivre, placé en vis-à-vis de la tache laser, et sur lequel il se condense pour former le produit de synthèse. La synthèse des CNTs est fortement dépendante du processus d'interaction cible-faisceau et plus particulièrement des conditions expérimentales (énergie, durée d'impulsion, pression du gaz, substrat). Cette méthode permet d'obtenir des CNTs de 2 à 100 nm par condensation dans la phase gaz ou par coalescence sur le substrat.

L'avantage de cette méthode est la conservation de la stœchiométrie des éléments de la cible ainsi que la pureté et la cristallisation. Il a été démontré sa capacité à déposer des films très uniformes avec une variation de la surface allant de 2,3 % à 0,5 % (JA. Greer, 1995).

#### III.C.2.3 Ablation laser en liquide (PLAL) (Diouf, 2012) (JB Wang, 1998)

Cette méthode utilise le solvant comme source de précurseurs. Il permet la réalisation de nano agrégats quasi mono-dispersés et d'une très grande pureté comparée aux méthodes de production chimique. De plus, en cours de procédé, la surface des agrégats présente une réactivité inconnue pour le même matériau sous forme massive. Cette dernière propriété ouvre la voie à des possibilités de passivation ou de greffage de molécules.

#### III.C.2.4 Méthode HiPCO : Méthode de croissance catalytique continue en phase gazeuse

Elle correspond à la décomposition d'un penta carbonyle sous haute pression et sous un flux de monoxyde de carbone. Elle permet de produire de plus petits diamètres que la méthode d'ablation laser avec une qualité comparable, ce qui constitue un avantage pour les propriétés optiques (la bande interdite des nanotubes semi-conducteurs se déplace vers des régions spectrales où les détecteurs sont les plus sensibles) (Diouf, 2012). Elle pourrait permettre d'industrialiser la production de nanotubes en en produisant par kilo.

#### III.C.2.5 Dépôt chimique en phase vapeur (CVD)

Utilisée pour la première fois en 1995, la méthode de dépôt chimique en phase vapeur (CVD) s'est depuis démocratisée. Elle est un dérivé des méthodes classiques catalytiques ou pyrolytiques utilisées

pour la synthèse des fibres de carbone. Elle a l'avantage d'être moins coûteuse et de simplifier les étapes de synthèses des nanotubes (pas d'étape de purification). De plus, le rendement, la pureté (un minimum de CNT amorphe) et le contrôle de l'architecture des nanotubes sont bien meilleurs avec cette technique.

Cette méthode consiste à décomposer un hydrocarbure liquide ou gazeux, les atomes de carbone vont s'écouler en continu à travers la nanoparticule de catalyseur (= un métal), pour générer des atomes de carbone puis générer des CNT à la surface du catalyseur ou du substrat. Cette méthode a un grand degré de liberté : il est en effet possible d'exploiter plusieurs types de catalyseurs, d'hydrocarbures, à différentes températures avec différents substrats.

De façon plus précise, la vapeur d'hydrocarbure, lorsqu'elle entre en contact avec les nanoparticules métalliques « chaudes », se décompose d'abord en carbone et hydrogène. L'hydrogène s'envole et le carbone se dissout dans le métal. Après avoir atteint la limite de solubilité du carbone dans le métal à cette température, le carbone dissout précipite et cristallise sous la forme d'un réseau cylindrique énergétiquement stable. Un gradient thermique entre la décomposition des hydrocarbures (exothermique) et la cristallisation du carbone (endothermique) maintient le processus. Il y a ensuite deux possibilités de croissance de nanotubes :

- Le modèle de croissance de la pointe (Figure III-9 haut) : à faible interaction catalyseur-substrat, le carbone se diffuse à travers le métal par le bas et pousse les particules métalliques à l'extérieur du substrat
- Le modèle de croissance de base (Figure III-9 bas) : à forte interaction catalyseur-substrat, la précipitation sort de l'apex du métal avec tout d'abord une cristallisation du carbone sous forme de dôme hémisphérique qui évolue ensuite sous forme de graphite. Sur la surface périphérique extérieure, est déposé de l'hydrocarbure pour enraciner les nanotubes.

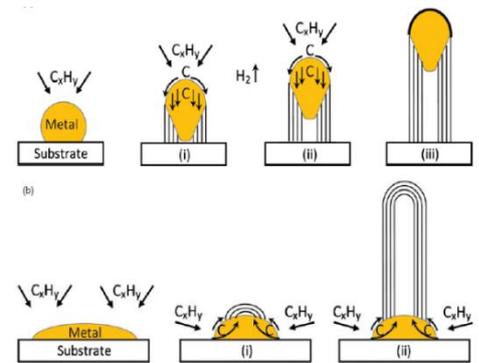


Figure III-9 : Formation des CNT par CVD (Kumar, 2010)

### III.C.2.6 Dépôt chimique en phase vapeur en présence d'un plasma (PECVD)

Il s'agit d'une CVD où l'hydrocarbure est sous forme de plasma pour remplacer une partie de l'énergie thermique par l'énergie du plasma (passe de 750-900°C à 500-700°C). Elle est depuis la principale méthode utilisée pour des tapis de CNT verticalement alignés directement sur le substrat.

## D. PROPRIÉTÉS

Nous avons déjà parlé dans la partie Structure des nanotubes de carbone, des propriétés électriques des CNT qui sont dépendantes de leur chiralité et de leur structure. En examinant de plus près leur comportement électronique, on constate que les CNT présentent une capacité d'émission électronique influencée par leur polarisabilité dipolaire. Cette dernière mesure la capacité d'un matériau à se polariser en réponse à un champ électrique externe, modifiant ainsi la distribution des charges positives et négatives à l'intérieur du matériau. Cette polarisation dipolaire, bien que sujette à différentes théories (liaison forte (Lorin X. Benedict, 1995) ou la théorie de la fonctionnelle de la densité (Edward N. Brothers, 2005)), présente certaines caractéristiques :

- Une anisotropie de la polarisabilité : la capacité de se polariser en réponse à un champ électrique externe varie en fonction de la direction du champ appliqué par rapport à l'axe du CNT (Lasse Jensen, 2005). On distingue la polarisabilité axiale  $\alpha_{//}$  de la polarisabilité transverse  $\alpha_{\perp}$ .
- Dépendance de la longueur pour les SWCNT : La polarisabilité axiale  $\alpha_{//}$  est proportionnelle à la longueur du tube pour les SWCNT semi-conducteurs, mais elle augmente plus rapidement que cette longueur pour les SWCNT métalliques. En d'autres termes, la polarisabilité axiale par unité de longueur diverge lorsque la longueur tend vers l'infini pour des nanotubes métalliques.
- Effet d'écrantage dans les MWCNT : Pour les MWCNT, la polarisabilité transverse  $\alpha_{\perp}$  est quasiment égale à celle de la couche extérieure.

L'écrantage électrique, aussi connu sous le nom de blindage électrique, désigne la réduction ou l'affaiblissement d'un champ électrique dans une zone donnée en raison de la présence de charges ou de matériaux conducteurs à proximité. Puisque les électrons sont émis depuis les pointes des CNT, on s'attend intuitivement à ce que les CNT alignés verticalement soient de meilleurs émetteurs que les films aléatoires. Cependant, cet aspect est compliqué par l'effet de l'écrantage électrique. Dans le contexte des films de CNT, le blindage électrique se produit lorsque les CNT sont trop proches les unes des autres, provoquant ainsi une interaction électrique entre elles. Afin de déterminer le réseau idéal d'émetteurs permettant d'obtenir la meilleure densité de courant, il est nécessaire de trouver un compromis entre la densité d'émetteurs et le facteur d'amplification, on retrouve 3 exemples de géométrie dans la Figure III-7. Minoux (E.Minoux, 2006) a ainsi étudié l'influence du rapport  $s/h$  sur le facteur d'amplification efficace d'un nanotube de hauteur  $h$  dans un réseau au pas  $s$ . Il montre que le facteur d'amplification d'un nanotube dans un réseau devient égal à celui d'un tube isolé lorsque le pas est d'environ deux fois la hauteur du tube. Ce même résultat est également observé en examinant la densité de courant d'un réseau uniforme en fonction du rapport  $s/h$ .

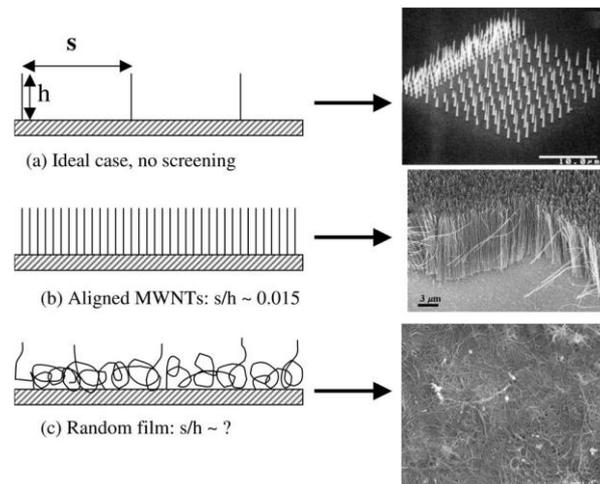


Figure III-10 : schémas illustrent les différentes géométries (Yuan Cheng, 2003)

En résumé, leur fin diamètre leur permet à la fois une haute conductivité électrique avec une concentration du champ électrique tout en pouvant émettre à faible tension. On retrouve des densités de courant pouvant atteindre jusqu'à  $10^8 \text{ A}\cdot\text{cm}^{-2}$  (Song, 2009).

### III.D.1 PROPRIÉTÉS THERMIQUES

La conductivité thermique des CNT peut s'élever jusqu'à  $5800 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$  (J. Hone, 1999) à température ambiante. Par comparaison, celle du diamant est l'une des plus importante de  $2000 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ . On retrouve même dans des échantillons en vrac, une conductivité thermique pour des WNT supérieur à  $200 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$  (J.Hone, 2002).

À basse température, on retrouve une dépendance linéaire de la conductivité thermique avec la température jusqu'à environ 40 K, qui est inférieure à celle du graphène, mais supérieure à celle du graphite.

Cette bonne conductivité thermique permet de véhiculer un courant électrique important. Cependant, leur fragilité dans l'environnement extérieur et leurs impuretés font que les CNT alignés ne sont pas utilisés seuls pour leur conductivité (T. Ji, 2016). Pour compenser, les composites CNT/polymère (Jabeen, 2015) ou CNT/époxy (J.Hone, 2002) ont été largement développés afin d'obtenir un matériau avec une bonne conductivité et une amélioration des propriétés thermomécaniques. Grâce à un processus de laminage à trois rouleaux, les CNT sont uniformément dispersées dans la matrice polymère pour former un réseau conducteur.

### III.D.2 PROPRIÉTÉ MÉCANIQUE

En raison de leur liaison C-C  $sp^2$ , les nanotubes devraient avoir une rigidité et une résistance axiale élevées. Plusieurs études ont été réalisées sur l'élasticité théorique (Q.Han, 2011) et expérimentale des CNT. Des mesures de l'amplitude des vibrations intrinsèques ont permis d'estimer la valeur du module d'Young à 1 à 4,15 TPa (M.M. Treacy, 1996) avec une valeur moyenne obtenue de 1,25 TPa (A.Krishnan, 1998) pour des SWCNT et d'environ 1 TPa pour les MWCNT selon leur diamètre. Ces valeurs sont très similaires à la constante élastique dans le plan des couches de graphène ( $1,00 \pm 0,1$  TPa (C.Lee, 2008)) ce qui appuie ce résultat.

Les SWCNT ont généralement un rapport longueur-diamètre plus élevé, ce qu'on a tendance à traduire par une plus grande flexibilité. Wang a mis en avant dans sa thèse (Z.Wang, 2008) que la variation du module d'Young des SWCNT dépend nettement plus de la chiralité que du diamètre du tube.

Par ailleurs, les limites de déformation en torsion dépendent du diamètre du tube : plus celui-ci est petit, plus il peut être tordu. Sans surprise, lorsque les MWNT se cassent, les couches les plus externes se cassent en premier. Cela implique que la limite de stockage énergétique par atome augmente inversement avec le diamètre du tube.

### III.D.3 PROPRIÉTÉS OPTIQUES

Les propriétés optiques des tubes sont très dépendantes de leur environnement. Contrairement aux matériaux 3D conventionnels, l'absorption optique dans les nanotubes se caractérise par la présence de pics nets plutôt que par un seuil d'absorption suivi d'une augmentation graduelle. Cette absorption résulte de transitions électroniques, ce qui confère aux pics une netteté associée aux différents types de nanotubes. La position des transitions entre paires de singularités de Van-Hove reste constante, que les nanotubes soient déposés sur un substrat ou en suspension dans un solvant. De plus, Les propriétés optiques des nanotubes de carbone sont étroitement liées à leur environnement. La largeur de la raie d'absorption diminue d'environ 30% lorsque les nanotubes sont en suspension par rapport à lorsqu'ils sont agrégés en corde sur un substrat (Lauret, 2003).

Cette absorption optique est également utilisée pour évaluer la qualité des échantillons de nanotubes de carbone (Itkis, 2005) en analysant l'intensité des pics par rapport au fond, qui provient des éléments carbone non nanotube.

## E. APPLICATIONS DES CNT EN TANT QUE SOURCE D'ÉLECTRONS

### III.E.1 TUBE À RAYONS X ET HYPERFRÉQUENCE

A l'occasion d'une thèse à l'École Polytechnique, E. Minoux a développé une source électronique en nanotubes de carbone pour des tubes hyperfréquences (E.Minoux, 2006) (Sabault, 2016). Sur un substrat en TiN, des nanotubes de moins de 10  $\mu\text{m}$  de long ont crû en plots séparés de 1  $\mu\text{m}$ . Il obtient pour différentes cathodes, une densité de courant de l'ordre de 1  $\text{A}\cdot\text{cm}^{-2}$  pour 20-25  $\text{V}\cdot\mu\text{m}^{-1}$  sur un réseau de 500x500  $\mu\text{m}^2$ . En mode pulsé les résultats obtenus sont encourageants : le courant émis a été multiplié par deux pour une même cathode.

Il recense l'ensemble des publications de 1995 à 2005 portant sur l'émission de champ par nanotubes de carbone que l'on peut retrouver dans l'Annexe VIII.D. Il y différencie les nanotubes simples, multi parois ou en film et donne des informations sur le courant émis maximum, la stabilité dans le temps, les mécanismes de dégradations et d'éventuelles remarques. Plusieurs conclusions en découlent :

- Il y a une saturation à forts courants émis. Cette saturation résulte soit de la présence d'adsorbats à la surface du nanotube soit d'une résistance en série avec le nanotube ;
- La dégradation des nanotubes est souvent due à un courant trop important qui provoque l'échauffement des tubes. Il y a une dégradation par évaporation qui peut provoquer un arc électrique ;
- Il n'y a pas d'évolution du courant émis au cours du temps si celui-ci est suffisamment en dessous du courant limite.
- Pour éviter l'écrantage latéral et pour conserver une bonne densité d'émetteurs, il privilégie la configuration de plusieurs nanotubes suffisamment séparés les uns des autres.

Dans les mêmes laboratoires qu'E. Minoux, L. Sabaut a remplacé la source d'électrons thermoioniques par une source en nanotubes de carbone ayant crûs directement sur le substrat par PECVD pour un tube à rayons X. Il s'est tout d'abord penché sur les cathodes appelées « micro-vias » pour finalement opter pour une source à grille enterrée. Son nom tire de l'électrode de contrôle qui est complètement recouverte par les autres couches pour limiter l'émission parasite et augmenter l'isolation électrique (l'isolation devient totalement volumique) qui constituaient les deux points bloquant de la cathode « micro-vias ».

Le substrat est composé d'un empilement de Si fortement dopé n++/SiO<sub>2</sub>/pSi recouvert pour la croissance des nanotubes d'une couche de TiN et d'une couche de Ni fait par photolithographie pour créer des carrés de catalyseur de 2x2  $\mu\text{m}^2$  (Figure III-11). Par la suite, ils ont cherché à minimiser la taille et le diamètre des nanotubes avec de meilleures propriétés d'émissions (plus grande densité d'émetteurs, plus forte modulation à nanotube court

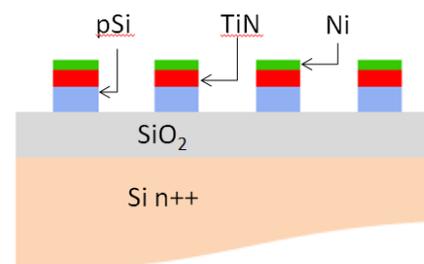


Figure III-11 : Cathode à grille enterrée

devant la taille de l'électrode, trajectoires plus resserrées) en déposant des nanodiamants comme masque de gravure.

Ils obtiennent un réseau aligné court ( $0,6 \mu\text{m}$ ) et fin ( $6 \text{ nm}$ ) de nanotubes pouvant émettre un courant de  $70 \mu\text{A}$  (soit une densité de courant de  $0,007 \text{ A}\cdot\text{cm}^{-2}$  ou  $0,04 \text{ A}\cdot\text{cm}^{-2}$  en prenant en compte le facteur de remplissage des émetteurs sur la surface). Ils ont aussi modulé le courant d'un facteur 5 pour une amplification de  $50 \text{ V}$ , ce qui n'est pas suffisant pour une application On/Off.

Ils se sont ici concentrés sur des cathodes peu denses où il y a peu de nanotubes sur chaque motif comme le montre la Figure III-12. Ils ont ainsi maximisé l'effet de pointe et minimisé l'écrantage de façon à gouverner exactement le courant d'extraction (de façon à contrôler les paramètres des rayons X émis).

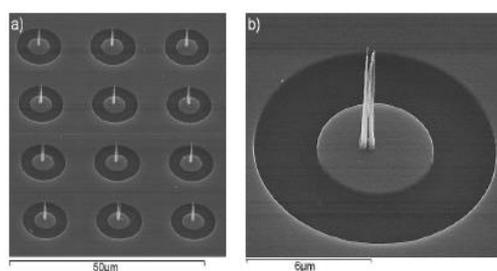


Figure III-12 : Image MEB de la cathode en nanotubes

### III.E.2 SPECTROMÈTRE DE MASSE

On retrouve plus rarement les nanotubes de carbone comme source d'électron dans les spectromètres de masse car il y est privilégié les filaments thermoïoniques. Cependant lorsque ces derniers ne peuvent pas être utilisés les CNT sont privilégiés comme dans l'application suivante : le spectromètre INEA développé par le LATMOS.

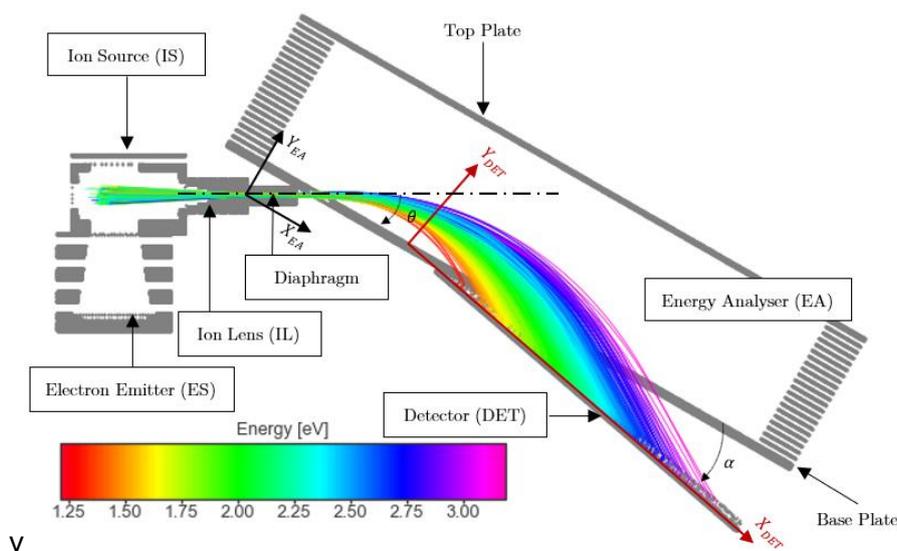


Figure III-13 : représentation schématique d'INEA avec la trajectoire des ions (Steichen, 2023)

Cet instrument a pour but de comprendre l'électrodynamique, la composition et le profil en altitude de la zone de transition entre la haute atmosphère terrestre et l'espace et la réponse de cette zone au forçage solaire.

En mode neutre, le gaz neutre entre dans l'instrument par une ouverture de  $10 \times 10 \text{ mm}^2$  et atteint la source d'ionisation où il est ionisé par les électrons émis par une source d'électrons (Figure III-13, panneau de gauche). Les filaments pour l'émission d'électrons sont classiquement utilisés dans l'instrumentation spatiale mais présentent deux inconvénients majeurs, leur consommation électrique et le dégazage de la paroi instrumentale induit par la chaleur (qui pourrait être une source de pollution). Le LATMOS a donc développé un nouveau type de source d'ionisation avec cathode de nanotubes en carbone comme émetteur en utilisant le principe d'émission à champ amélioré. Une telle solution ultérieure résout les deux principaux inconvénients précités.

On retrouve en Annexe VIII.E une description plus détaillée du mécanisme de ce spectromètre.

#### III.E.3 SOURCE DIRECTE D'IONISATION

Une dernière application notable des CNT concerne leur utilisation comme sources directes d'ionisation, exploitant les propriétés de l'effet de pointe. On peut citer, par exemple, l'application de Fink où, en mode continu, une très haute tension est appliquée au collecteur pendant que les CNT sont à la masse (R. L. Fink, 2009). La Figure III-14 illustre le circuit d'extraction d'ions où la distance entre les CNT et la grille est de l'ordre de  $100 \mu\text{m}$  et de  $2 \text{ cm}$  avec le collecteur, et à des pressions de gaz d'hydrogène variant de  $1$  à  $10 \text{ mTorr}$ .

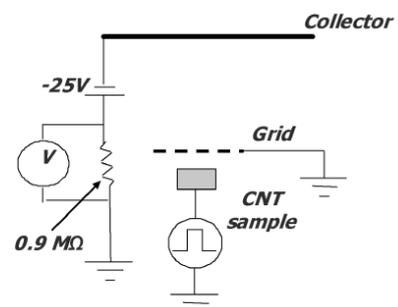


Figure III-14 : Schéma du circuit d'extraction du courant ionique émis par les CNT (R. L. Fink, 2009)

Selon Jonathan L. Shaw (Shaw & Hsu, 2017), lorsque l'on applique une tension continue entre une anode constituée d'un film de nanotubes de carbone et une cathode, un champ électrique non linéaire se forme près des extrémités des nanotubes, induisant localement la formation d'ions au niveau de leurs extrémités ouvertes. Ces ions sont ensuite accélérés vers la cible par le gradient de potentiel, atteignant un courant ionique maximal de  $100 \text{ nA}$  sous une pression de  $136 \text{ mTorr}$  de gaz d' $\text{H}_2$ , présenté dans la Figure III-15. Il démontre aussi que le courant ionique augmente linéairement avec la pression.

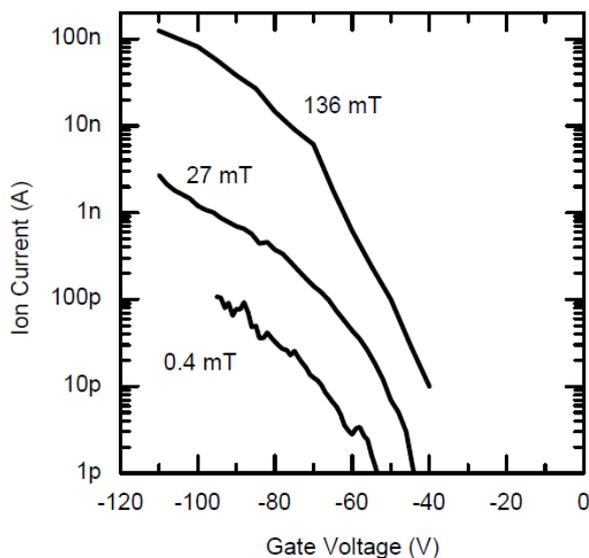


Figure III-15 : Courbe du courant d'ionisation en fonction de la tension pour trois pressions différentes (Shaw & Hsu, 2017)

Dans une étude distincte, Modi (Modi, 2003) démontre que l'ionisation directe par CNT peut générer un courant continu de 460 mA à 346 V dans l'air, en comparaison à 69 mA à 960 V obtenus avec des électrodes métalliques traditionnelles. Chepurnov rapporte quant à lui des résultats sous des tensions nettement supérieures, de l'ordre de 10 à 40 kV, correspondant à des champs électriques de 600 à 2600 V/mm. (Chepurnov, 2018).

Une autre stratégie d'utilisation des CNT comme source d'ionisation consiste à augmenter significativement la tension appliquée tout en maintenant une pression relativement basse. Dans cette optique, Zesong Wang (Wang Z. , 2012) a étudié et comparé les mécanismes d'émission de champ et d'ionisation sur un échantillon de CNT sous une pression d'Argon de  $1,9 \times 10^{-3}$  Pa. Les essais ont été menés avec une trois électrodes : un émetteur séparé de 2mm d'une grille en regard d'un collecteur. La source CNT est portée à une tension négative et la grille est alimentée par une alimentation basse tension. Les résultats, illustrés dans la Figure III-16, révèlent que le courant d'ions généré par cette méthode reste de l'ordre de quelques microampères, ce qui est nettement inférieur à celui obtenu par l'émission électronique.

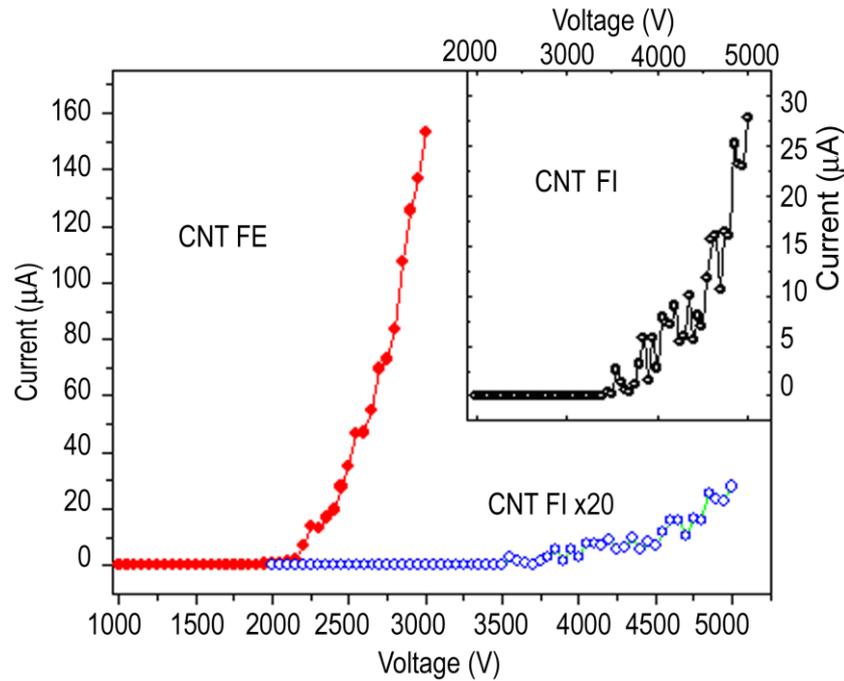


Figure III-16 : Comparaison de l'émission de champs électronique (FE) face à l'ionisation (FI) des CNT (Wang Z. , 2012)

Ces résultats conduisent à la conclusion que l'utilisation efficace des CNT comme sources d'ionisation directe nécessite soit une élévation notable de la tension, soit une augmentation de la pression. En conséquence, il a été décidé d'exploiter les CNT principalement comme sources d'électrons, qui sont ensuite utilisés pour l'ionisation du gaz de deutérium/tritium. Cette approche permet de tirer parti de l'efficacité des CNT dans la génération de courants électroniques, tout en ayant une émission plus contrôlée et énergétiquement économique.

C'est dans ce contexte, que cette thèse explore la possible utilisation de CNT dans la source d'ions désignée par Sodern. Nous allons d'abord nous pencher sur les caractéristiques des CNT pour voir si elles peuvent répondre aux caractéristiques de la source d'ions SODILOG.



## IV. VALIDATION DES CNT POUR LES SOURCES D'IONS PENNING

Après avoir approfondi notre compréhension des nanotubes de carbone et examiné leur potentiel dans des applications technologiques, nous nous tournons vers leur intégration pratique dans les sources d'ions développées par Sodern.

Ce chapitre est guidé par des exigences internes, propres à Sodern, qui détaillent les conditions opérationnelles nécessaires à l'efficacité des tubes neutroniques. Ces conditions comprennent l'utilisation d'un environnement gazeux à base de deutérium-tritium, une gamme de pression définie, une longue durée de vie opérationnelle, des limites de puissance et des exigences en matière de température et de pulsation neutronique. L'ensemble des paramètres est listé dans le Tableau IV-1 :

Paramètres		Spécifications
Environnement gazeux		Deutérium-Tritium
Pression		Entre $10^{-5}$ Torr et $10^{-2}$ Torr Typiquement $10^{-3}$ Torr
Temps de vie minimum du tube neutronique		> 1000 heures
Limite de puissance injectée dans la source d'ion (estimation)		<10 W
Température		Pétrolier : -10 à +150°C ( $\pm 10-15$ °C) Plage étendue : -20 à +175 °C ( $\pm 10-15$ °C)
Pulse	T excitation (électrique)	Mode Sigma : 160 $\mu$ s Mode C/O : 55 $\mu$ s
	Période	Mode Sigma : 1500 $\mu$ s Mode C/O : 200 $\mu$ s
	Temps retard à l'amorçage	10-50 $\mu$ s en fonction de la pression Idéalement atteindre < 10 $\mu$ s

Tableau IV-1 : Paramètres et spécifications du tube neutronique

Le but de ce chapitre est d'établir si les CNT peuvent répondre aux exigences d'utilisation des tubes neutroniques et de vérifier la précision de leur caractérisation à l'aide d'un banc d'essais disponible à Sodern, nommé « Banc Alumine » et initialement conçu pour d'autres applications (caractérisation d'isolant THT sous vide) mais dont l'utilisation a pu être détournée pour les besoins de ces travaux.

Nous commençons par une présentation détaillée des échantillons de CNT ainsi que les performances du banc d'essais, en particulier sa capacité à mesurer avec précision les caractéristiques d'émission des CNT.

Les sections suivantes présentent les données collectées sous diverses pressions et températures, abordant les processus comme le dégazage des nanotubes et l'impact de la distance inter-électrode sur l'émission électronique. L'étude des émissions sur la durée, les tests en mode pulsé et l'analyse d'autres facteurs influant sur l'émission est également présentée dans ce chapitre.

## A. DÉMARCHE, MATÉRIEL ET MÉTHODE

### IV.A.1 PRÉSENTATION DES ÉCHANTILLONS

Les nanotubes de carbone sont déposés par PE-CVD (*Plasma Enhanced – Chemical Vapor Deposition*) au centre d'une plaque en Aluminium 1050 A, carré de 39,5\*39,5 mm<sup>2</sup>, illustré par la Figure IV-1. L'état de surface, qui a été vérifié par profilomètre, est caractérisé par un Ra de 0,201 µm.

Le substrat comporte une rainure circulaire, utilisée lors du centrage, qui entoure la zone de dépôt des CNT. De façon à utiliser également ces échantillons sur le banc d'essai du LATMOS, les substrats sont pourvus de 4 trous de 3,4 mm de diamètre aux angles. Toutes les arêtes sont arrondies pour éviter tous phénomènes de modification du champ électrique.

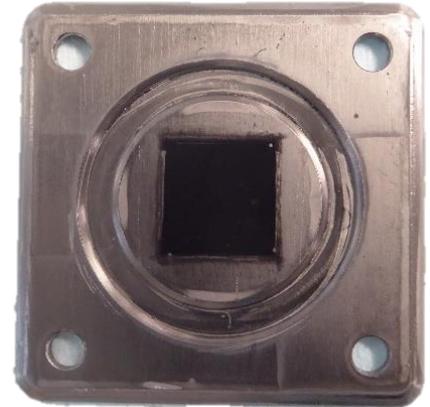


Figure IV-1 : Photographie de l'échantillon SOD20-04

La zone de croissance des CNT est délimitée par une encre de masquage déposée par *dip-coating* motorisé créant un carré de 10\*10 mm<sup>2</sup> au centre du substrat. La technique de PE-CVD consiste à un dépôt de nanotube à partir d'un plasma grâce à une mise sous tension du substrat, pouvant laisser apparaître des marques de passage de la tension comme le montre la Figure IV-2. Le masquage n'étant pas efficace à 100 %, un nettoyage manuel est ensuite effectué. On retrouve quand même des nanotubes sur d'autres parties du substrat comme dans les trous, ce qui est observable sur la photo de la Figure IV-3.

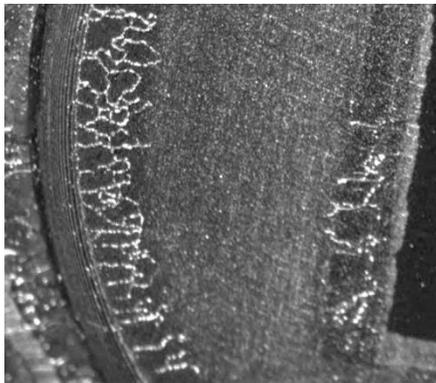


Figure IV-2 : Photographie des lignes de courant de l'échantillon 1019-SOD2

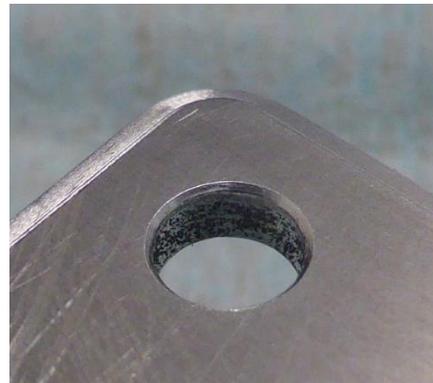


Figure IV-3 : Photographie montrant la croissance de CNT dans un trou de l'échantillon 1018-SOD1

Le dépôt de nanotubes engendre un carré opaque qui est caractéristique de ce matériau puisque les nanotubes sont connus pour absorber une très grande partie de la lumière du visible.

#### IV.A.1.1 Composition

Nous avons tout d'abord caractérisé ces échantillons au microscope électronique à balayage (MEB). Le MEB utilise les produits d'interactions, provoqués par un faisceau d'électrons incident. Les images

#### IV. Validation des CNT pour les sources d'ions Penning

reconstituées sont produites en balayant ligne par ligne la surface de l'échantillon avec ce faisceau focalisé. Les électrons interagissent avec les atomes de l'échantillon, produisant divers signaux contenant des informations sur la topographie de surface et la composition de l'échantillon (analyse des électrons rétrodiffusés ou des rayons X). L'énergie des électrons est sélectionnée grâce à la déviation de ces derniers par des lentilles électromagnétiques au sein du microscope. Ce microscope possède deux énergies :

- 5 keV : à basse énergie plutôt utilisée pour des images topographiques ;
- 15 keV : utilisée en routine.

Tout d'abord, on observe la surface des nanotubes avec un grossissement de 100 (Figure IV-4). En zoomant (Figure IV-5), on note des espaces craquelés où les nanotubes sont plus écartés les uns des autres. Ces espaces vont favoriser l'effet de pointe et donc l'émission d'électrons.

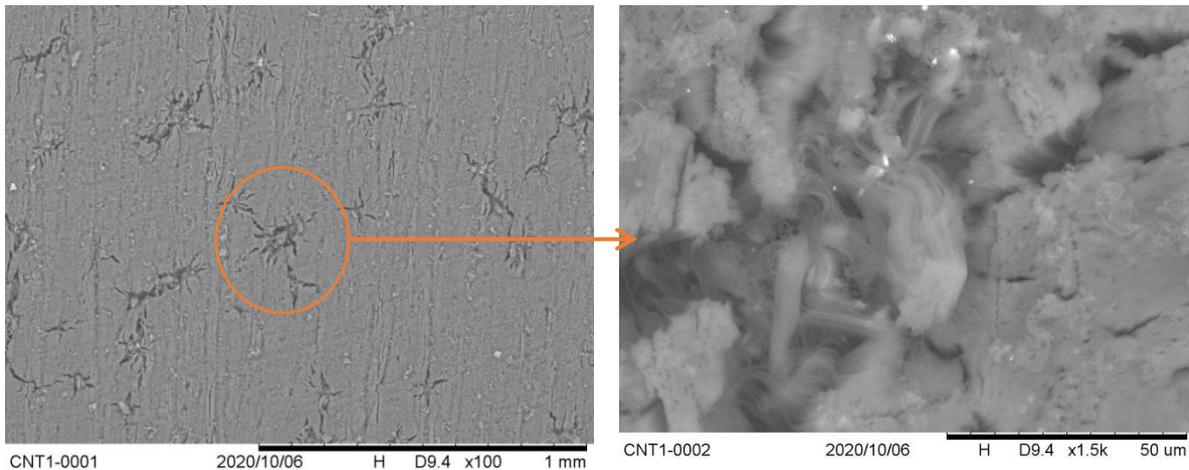


Figure IV-4: Image MEB à 15 keV et grossissement  $\times 100$

Figure IV-5 : Image MEB à 15 keV et grossissement  $\times 1,5k$

À 5 keV (Figure IV-6), on différencie nettement mieux les nanotubes et on distingue des impuretés à la surface : il s'agit probablement de paquet de nanotubes au vu de leur forme.

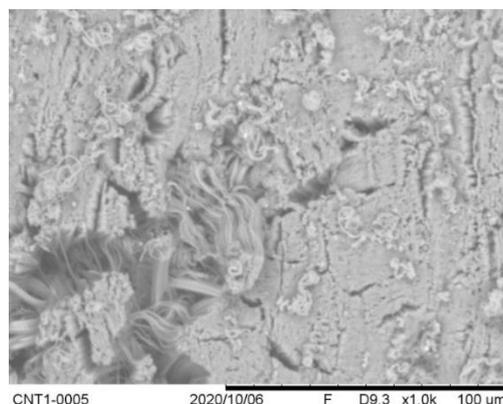


Figure IV-6 : Image MEB à 5 keV et grandissement  $\times 1k$

L'étude de Zhao (H. Zhao, 2010), montre que la quantité d'impureté joue un rôle dans l'émissivité de l'échantillon. Il prend le cas de 5 échantillons ayant de 100% à 0% d'impureté et montre des émissions

différentes retranscrites dans la Figure IV-7. Il conclut de même que la qualité des nanotubes de carbone est fortement dépendante des conditions de dépôt lors de leur fabrication.

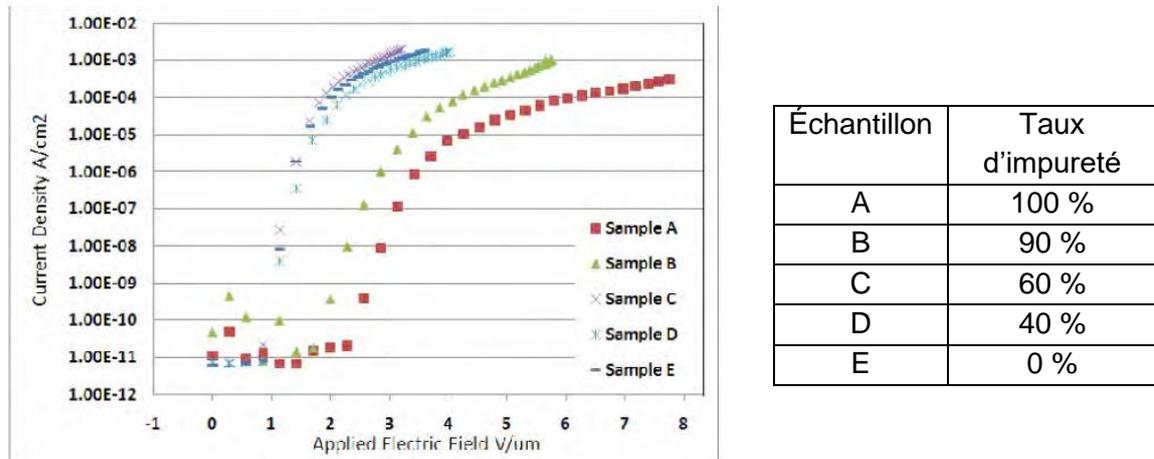


Figure IV-7 : Courbes I-V en fonction du taux d'impureté de l'échantillon (de 100% à 0 %) (H. Zhao, 2010)

Une deuxième analyse est faite pour déterminer la composition chimique de l'échantillon via une sonde EDS (*Energy-Dispersive X-ray Spectroscopy*). Ce ne sont plus les électrons mais les photons qui sont détectés pour établir un histogramme représentant la distribution des rayons en fonction de l'énergie. Ces photons caractéristiques émis lors du changement d'un électron d'un niveau énergétique à un autre, permettent de faire une cartographie chimique pour déterminer la répartition spatiale des éléments.

Dans notre échantillon, on retrouve de façon prédictible principalement du carbone et de l'aluminium. On remarque une présence de Fer qui peut s'expliquer par un traitement fait a posteriori par le fournisseur (Nawa Technologies). L'oxygène présent est de la pollution, il devrait normalement dégazer lors de la mise sous tension.

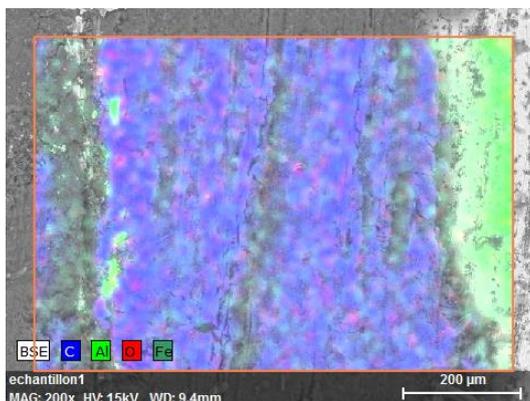


Figure IV-8 : Image Sonde EDX au bord des nanotubes

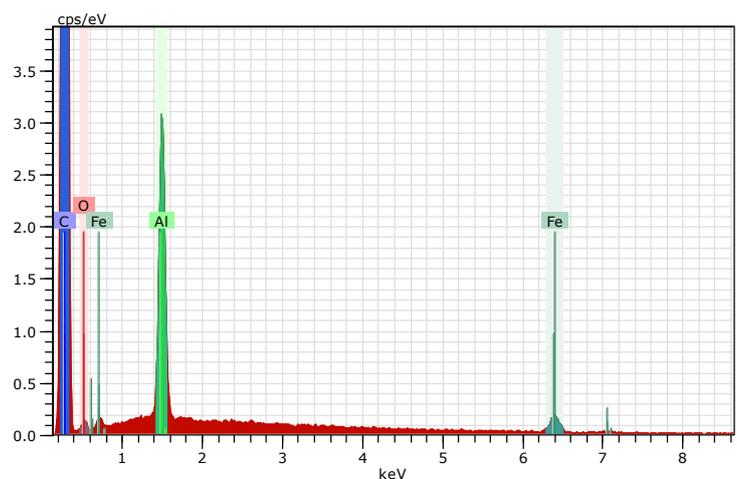


Figure IV-9 : Spectre EDS

## IV. Validation des CNT pour les sources d'ions Penning

Il a été observé qu'après utilisation, les molécules de fer et d'oxygène sont encore présentes à de très faible quantité. L'oxygène est mesuré à 1,4 %, soit une très légère diminution de 0,4 %, tandis que le fer est présent à hauteur de 0,5 %.

### IV.A.2 BANC D'ESSAIS SODERN

#### IV.A.2.1 Présentation

La cathode polarisée négativement est déposée sur un support en vis-à-vis avec une électrode plane.

Cette géométrie plan/plan permet d'obtenir un champ électrique homogène, ce qui nous donne des résultats reproductibles (Latham, 1995).. La difficulté première de cette méthode est d'avoir un parallélisme convenable entre les deux électrodes, ce qui introduit une difficulté dans la mesure inter-électrodes. C'est pour cette raison que nous avons choisi d'utiliser une entretoise isolante utilisée comme repère.

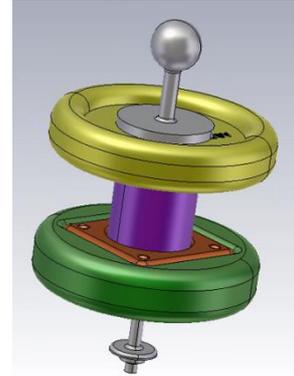


Figure IV-10 : Visualisation du montage via CST Studio

Successivement la distance inter-électrodes varie de 0,3 à 1 mm, la tension appliquée va être adaptée de façon à toujours extraire des électrons (de 150 V à 1 keV) et la pression alterne entre un vide de  $10^{-6}$  mbar à une pression en deutérium de  $10^{-2}$  mbar.

La configuration choisie est analogue à une diode c'est-à-dire une anode et une cathode positionnées parallèlement et séparée d'un isolant sur une certaine distance. Un porte échantillon fixe en aluminium soutient la cathode en aluminium au centre de laquelle se trouve le dépôt de nanotubes. En regard, on retrouve une anode polie, à la masse. On retrouve tous ces éléments dans le schéma électrique de la Figure IV-11.

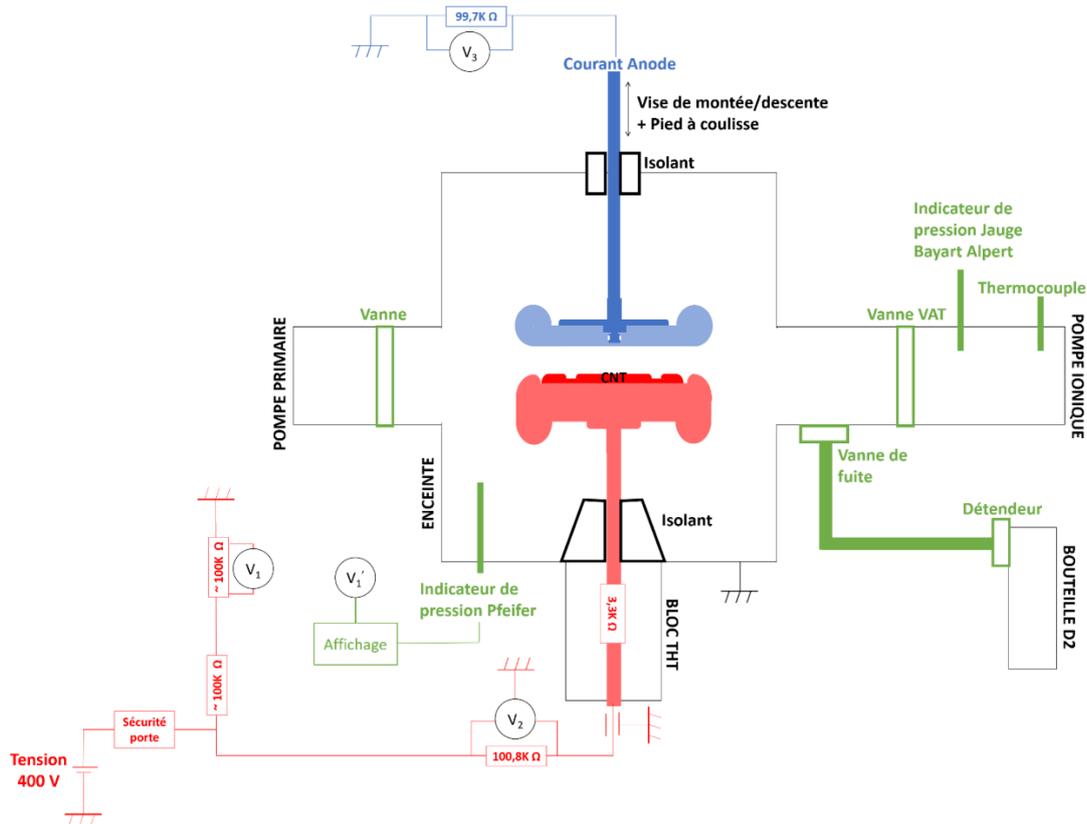


Figure IV-11 : Schéma électrique du banc d'essais Sodern

Le vide est mis en place par une pompe primaire, une pompe turbo et une pompe ionique permettant d'atteindre en moins d'une heure des pressions de l'ordre de  $10^{-4}$  mbar mesuré par un capteur de pression Pfeiffer. La cathode est polarisée négativement via une source de tension protégée par une résistance de  $R_{V2} = 100,8 \text{ k}\Omega$ . On mesure la tension appliquée à l'aide d'un pont diviseur sur le voltmètre V1. Ce même voltmètre peut être utilisé pour relever la pression selon l'expérience.

L'anode est vissée sur une liaison sphérique lui conférant plusieurs degrés de liberté puis reliée à une vis sans fin de montée et descente. Pour s'affranchir de la rotation, une cale en céramique est placée dans la gouttière de la cathode lors de la mise en place. On stabilise et enregistre le positionnement des électrodes avant de l'enlever. Connaissant ces dimensions, nous pouvons alors calculer la distance inter-électrode.

Les paramètres que nous pouvons relever lors des expériences sont :

- La distance anode-cathode, via la lecture du pied à coulisse numérique ;
- La pression, via l'indicateur de pression Pfeiffer ;
- La tension appliquée à la cathode, passant par un pont diviseur au niveau de V1 réduisant la tension par 1000.
- Le courant reçu sur l'anode et/ou sur la cathode.

### IV.A.2.2 Validation du moyen d'essais

#### IV.A.2.2.1 Comparaison courant Anode et courant Cathode

De façon à caractériser le bâti, nous avons enregistré le bruit de fonctionnement dans une configuration Anode-Cathode sans CNT.

Une augmentation par palier de la tension a été choisie pour visualiser le chargement et déchargement de la capacité à chaque augmentation de tension. L'anode et la cathode sont suffisamment éloignées pour avoir un champ électrique trop faible pour extraire des électrons ( $> 50 \text{ V}\cdot\text{mm}^{-1}$ ).

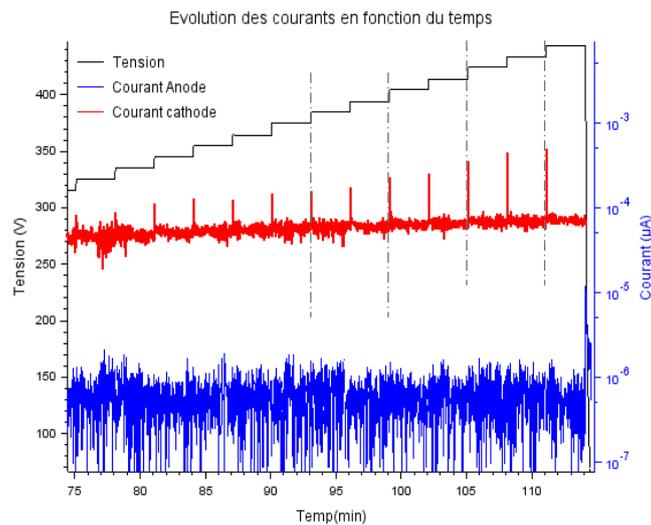


Figure IV-12 : Augmentation de la tension par palier de 320 à 600 V et enregistrement des courants à l'Anode et à la Cathode

On remarque sur la Figure IV-12 que les voltmètres enregistrent un courant stable quelle que soit la tension appliquée avec au maximum des courants de  $10^{-4} \mu\text{A}$  au niveau de la cathode. La décharge de la capacité est visible par une augmentation du courant sur la cathode à chaque augmentation de tension (mise en avant par les traits pointillés).

Suite à cela nous avons décidé que tout courant inférieur à  $10^{-4} \mu\text{A}$  ne serait pas pris en compte résultant du bruit du bâti et non de l'émission électronique des nanotubes.

Par la suite, nous avons comparé les courants au niveau de l'Anode et de la Cathode en effectuant la même augmentation de tension sur 3 échantillons mais, en se mettant à des distances comprises entre 0,5-1 mm de façon à extraire un courant émis par effet de champs.

On obtient un écart entre les courants Anode et Cathode de 2 % avec, comme pour le bruit, un courant Anode supérieur au courant Cathode. En prenant en compte les différences de résistance entre les deux voltmètres (100,8 et 99,7 K $\Omega$ ), l'erreur se réduit à 1,26 %.

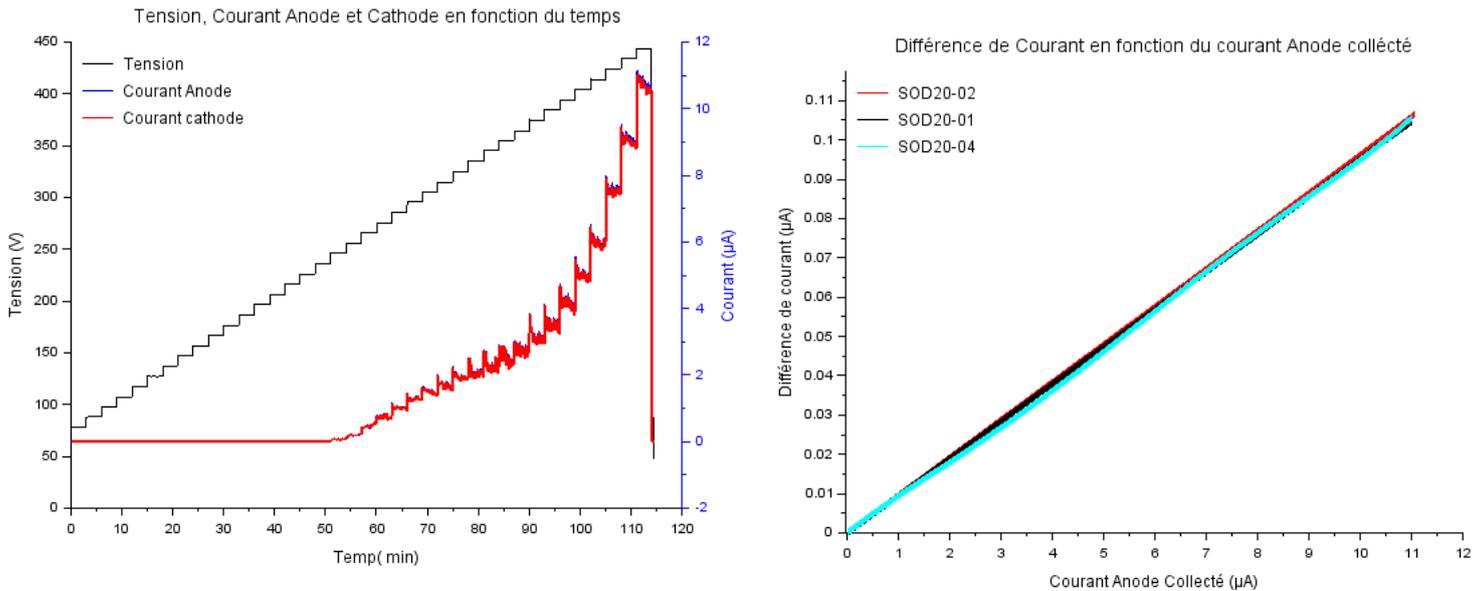


Figure IV-13 : Augmentation de la tension par palier de 320 à 100 V et enregistrement des courants à l'Anode et à la Cathode

On retrouve une proportionnalité entre l'erreur et le courant Anode qui a été vérifié pour tous les échantillons comme le montre la Figure IV-13. Cette différence de courant n'est donc pas due à un processus physique (comme l'émission secondaire ou une ionisation) mais bien dépendante du bâti.

Elle s'explique principalement par la lecture du Voltmètre n°2 qui autorise au maximum une tension de 500 V pic alors que nous l'utilisons jusqu'à 400 V en continu.

#### IV.A.2.2.2 Essai avec échantillon nu

Nous avons voulu savoir si le substrat, décrit dans le paragraphe Présentation des échantillon, pouvait être responsable d'une partie du courant collecté.

Pour cela nous utilisons un substrat ayant subi le même traitement que les autres échantillons, à la seule différence qu'une encre de masquage a été déposée sur l'ensemble de sa surface empêchant la croissance de nanotubes. Le courant maximum collecté est de  $7,94 \times 10^{-5} \mu\text{A}$  avec une moyenne de  $5,14 \times 10^{-5} \mu\text{A}$  sur l'Anode pour un champ électrique allant de 150 à  $800 \text{ V} \cdot \text{mm}^{-1}$ . Ce courant étant identique à celui mesuré sur la Figure IV-12, nous concluons que le substrat n'émet pas d'électrons.

#### IV.A.2.2.3 Conclusion sur le moyen d'essais

Pour l'ensemble des essais, nous considérons donc que les mesures du courant collecté sur l'Anode correspondent au courant émis par les nanotubes et, de façon à garder une marge d'incertitude, que seulement les courants supérieurs à  $10^{-4} \mu\text{A}$  sont pris en compte. Nous introduisons alors le principe de champ électrique d'activation qui correspond à la valeur du champ minimum pour extraire des électrons des nanotubes, soit avoir un courant d'au moins  $10^{-4} \mu\text{A}$ .

*B. ÉTUDE DE L'ÉMISSION ÉLECTRONIQUE À TEMPÉRATURE AMBIANTE ET SOUS VIDE*

Pour chaque expérience, une tension est appliquée **sur la cathode** et l'appareil subit un cycle de tension correspondant à (Figure IV-14) :

- Une augmentation de tension pas à pas d'une valeur minimale ( $V_{MIN}$ ) à la tension souhaitée ( $V_{MAX}$ ). L'augmentation de tension ( $V_{STEP}$ ) et les pas de temps ( $T_{STEP}$ ) peuvent être spécifiés de façon à contrôler la durée des échauffements pour avoir des échauffements rapides (utiliser pour les phases de vieillissement) ou des variations lentes (pour les mesures) ;
- Un niveau à la tension souhaitée pendant la durée définie ( $T_{LEVEL}$ ) ;
- Une diminution étape par étape qui fonctionne avec les mêmes paramètres que l'augmentation de tension ;
- Un délai entre chaque cycle ( $T_{DELAY}$ ).

Chaque cycle est répété  $n$  fois.

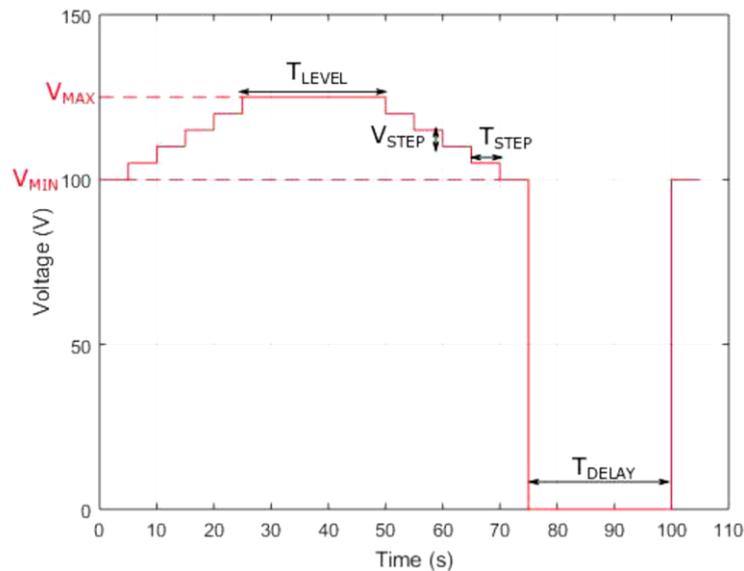


Figure IV-14 : Différents paramètres utilisés lors d'un cycle de tension

IV.B.1 DÉGAZAGE DES NANOTUBES

Après chaque ouverture du bâti, l'échantillon subit un premier cycle très rapide appelé « phase de vieillissement », représenté par la Figure IV-15 et dont les paramètres sont indiqués dans le tableau suivant.

Type d'expérience : Vieillissement							
Distance mm	Vmin (V)	Vmax (V)	Vstep (V)	Tstep (s)	Tdelay (s)	Tlevel (s)	Répétition
1,1	100	350→ 600	10	1	0	0	450

Tableau IV-2 : Valeurs typiques de paramétrage d'une phase de vieillissement

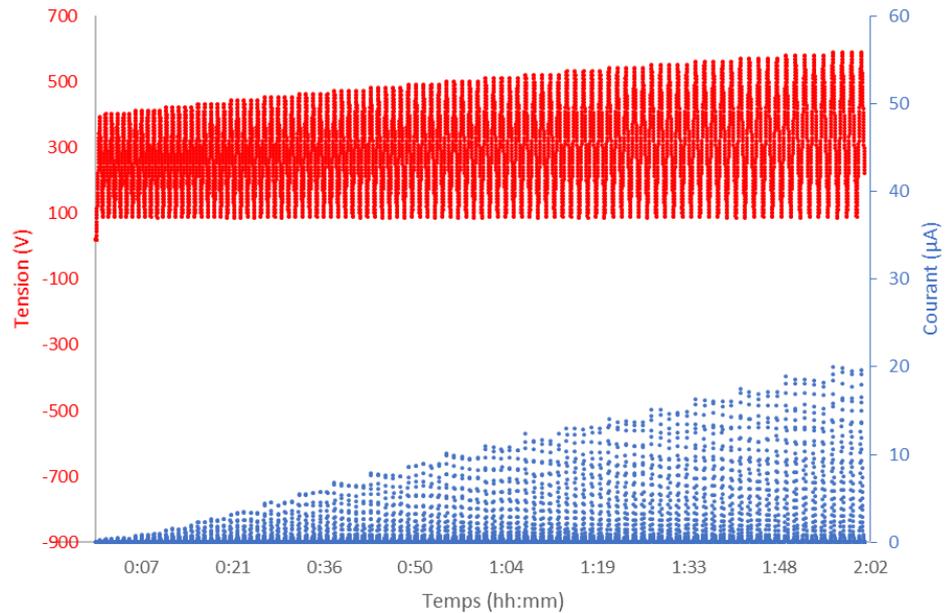


Figure IV-15 : Phase de vieillissement

Nous avons remarqué que les propriétés d'émission d'un échantillon changent légèrement au fil des mesures lors des premiers enregistrements. Ces fluctuations peuvent être la résultante de plusieurs phénomènes physiques. La première hypothèse est le dégazage des nanotubes absorbant certaines molécules comme  $\text{NH}_3$ ,  $\text{N}_2$ ,  $\text{CO}_2$ ,  $\text{CH}_4$ ,  $\text{H}_2\text{O}$  et plus particulièrement  $\text{NO}_2$  et  $\text{O}_2$  ce qui modifierait leur émission électronique (Shuhei Inoue, 2018; Hyunju Chang, 2001; Takuya Kokabu, 2017). Cette propriété a, par exemple, été explorée pour l'utilisation de CNT dans un système de détection de combustion de carburant (M.Mittala, 2014). La phase de vieillissement fait sous vide ( $> 10^{-7}$  Torr) permettrait de dégazer les nanotubes.

D'autres hypothèses mettent en avant des modifications physiques des nanotubes comme le claquage des nanotubes étant plus haut que la moyenne (Gautier L.-A. , 2016), la destruction d'impureté à leur surface ou de cristallisation (Pablo, 1999), l'affinement de l'apex (Sabaut, 2016) ou la réorientation grâce à la présence d'un champ électrique (Wei, 2001). Ces modifications sont considérées comme des dégradations mineures des nanotubes, obligatoires pour une bonne reproduction des mesures et elles seraient mises en œuvre lors de la toute première mise sous tension.

Il est donc nécessaire de réaliser plusieurs cycles de mesures dans le but d'obtenir une émission stable et reproductible. Cette phase nous a été conseillée par le Laboratoire LATMOS et par des membres de l'équipe « Nanotubes de carbone et application » du LPCIM.

#### IV.B.2 VARIATION DE LA DISTANCE INTER-ÉLECTRODE

Pour deux surfaces planes parallèles, le champ électrique entre ses surfaces vaut simplement :

$$E = \frac{\Delta V}{d}$$

Avec  $\Delta V$  la différence de  
potentiel ;  
 $d$  la distance. (IV-12)

#### IV. Validation des CNT pour les sources d'ions Penning

La variation de la distance inter-électrode va donc jouer sur la tension à appliquer pour des champs électriques équivalents.

Pour chaque échantillon, nous cherchons à comparer l'émission électronique sous un même champ donné.

Pour cela, nous faisons varier la distance inter-électrode de 0,5 à 2 mm (précision de 0,01 mm) avec une tension appliquée ne dépassant pas 1,5 kV, limitée par le système de mesure. À l'inverse, nous gardons une distance minimum entre les électrodes pour empêcher la production d'arc électrique provoquant l'arrachement irréversible de nanotube.

Pour l'échantillon SOD20-04, à une distance de 0,79 mm, nous avons observé une diminution brutale de la tension et un courant fortement augmenté (Figure IV-16). Lors de ce test, il y a eu un contact entre l'anode et la cathode au niveau des bords de la cathode (Figure IV-17), soit une partie où il n'y a pas de nanotubes. Cette proximité était due à un manque de parallélisme entre les électrodes, ce qui a permis de montrer certaines limites de notre mise en œuvre, malgré toutes les précautions prises.

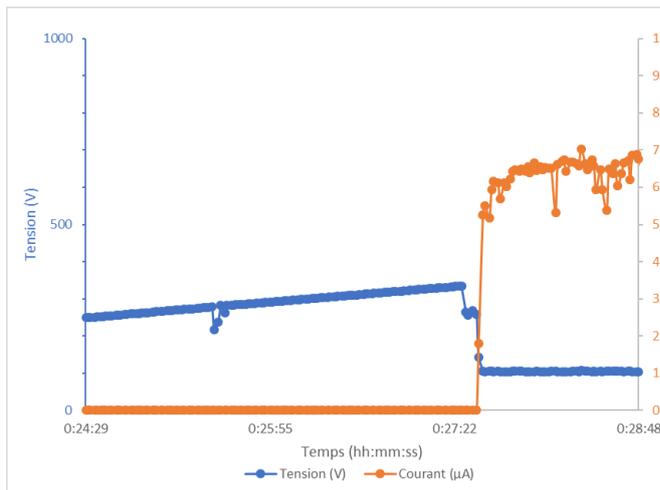


Figure IV-16 : Courbe de la tension et du courant en fonction du temps lors d'un contact entre l'anode et la cathode pour l'échantillon SOD20-04



Figure IV-17 : Photographies de l'impact sur l'anode et sur la cathode

À chaque distance inter-électrode, nous augmentons et diminuons progressivement la tension de façon à obtenir des courbes I-E. Par régression linéaire, nous obtenons le graphique suivant pour la cathode SOD20-01 :

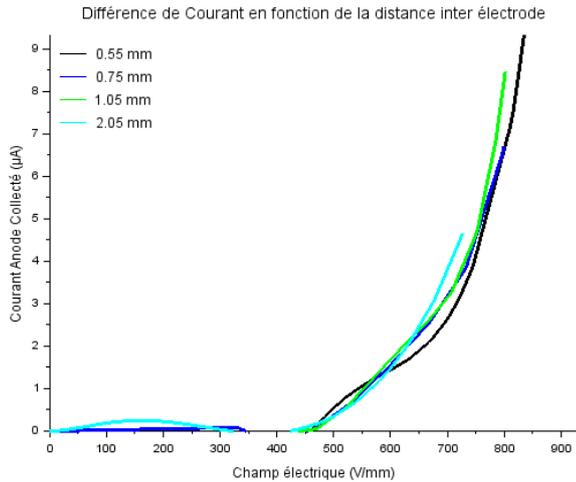


Figure IV-18 : Courbe I-E en fonction de la distance inter-électrode pour l'échantillon SOD20-01

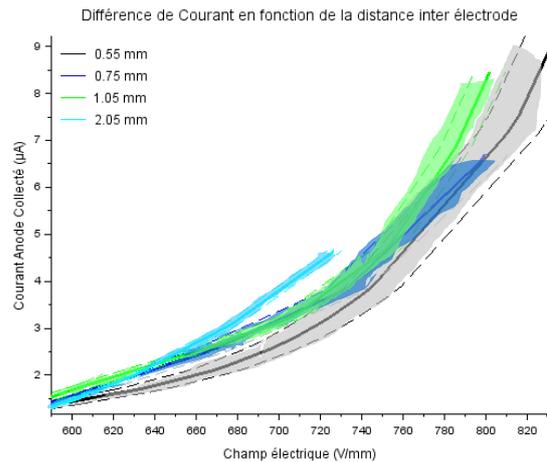


Figure IV-19 : Courbe I-E en fonction de la distance inter-électrode avec une marge de 0,01 mm

Ces courbes fournissent la tension d'activation et une polarisation de fonctionnement pour des niveaux de courant d'émission souhaités. Toutes ces courbes suivent l'équation de Fowler Nordheim comme nous le prouvons en utilisant ces comparatifs comme référentiel pour nos simulations dans le chapitre V.

Malgré des champs électriques identiques, les courants obtenus peuvent varier d'un facteur 1,25 selon la distance inter-électrode. On remarque que pour un même courant, le champ diminue lorsque la distance augmente. En modifiant cette distance de  $\pm 0,01$  mm, on obtient une superposition des courbes comme le montre la Figure IV-19. Cette figure met en avant l'influence et la nécessité de précision de la distance inter-électrode qui est discutable sur notre expérience. Il sera donc intéressant par la suite de stabiliser cette distance à l'aide d'entretoise physique afin de rendre les expériences plus reproductibles entre elles.

Une seconde explication de la variation du courant viendrait de l'équation de Fowler Nordheim et du facteur  $\beta$  d'amplification de champ qui est dépendant de la morphologie de l'émetteur. Dans un tapis de nanotubes, l'émission électronique n'est pas homogène sur l'ensemble de la surface de dépôt mais elle est régie par des points plus ou moins marqués venant de certains nanotubes ou agglomérat de nanotubes qui subissent un plus fort champ électrique.

Cette observation a été fait de multiple fois comme par Bonnard en 2002, Shimoï en 2019 (Shimoï, 2019) ou par Liao en 2007 (Liao, 2007) pour des densités de courant élevés, de l'ordre de  $267 \text{ A}\cdot\text{cm}^{-2}$ . En augmentant la distance inter-électrode, ces pointes vont être identifiées comme des excroissances s'échappant du reste des nanotubes. Ces excroissances en forme de saillie tendent alors vers le cas limite d'une saillie sphérique ce qui provoquera une saturation du facteur  $\beta$ .

L'influence de la distance inter-électrode sera alors réduite dans le calcul du facteur  $\beta$ . Cette analyse, démontrée par Bonard (Bonnard, 2002) a déterminé une distance de saturation de  $250 \mu\text{m}$  avec une activation à  $0,7 \text{ V}\cdot\mu\text{m}^{-1}$  qui a été retrouvée expérimentalement par Gautier en 2016 (Gautier L.-A. ,

#### IV. Validation des CNT pour les sources d'ions Penning

2016). Cette distance est trop petite pour être atteinte dans notre bâti, de plus elle nécessite de connaître parfaitement la taille de nos nanotubes.

Dans le cas de la Figure IV-20 pour l'échantillon S02-R210616-1, on trouve une distance de saturation à 1,1 mm. Tout en sachant que l'ensemble des activations sont produites à un champ inférieur à  $0,7 \text{ V}\cdot\mu\text{m}^{-1}$  donc répondant au calcul de Bonard. L'un des raisons de cette différence peut être notre diamètre des nanotubes, qui nous est inconnu.

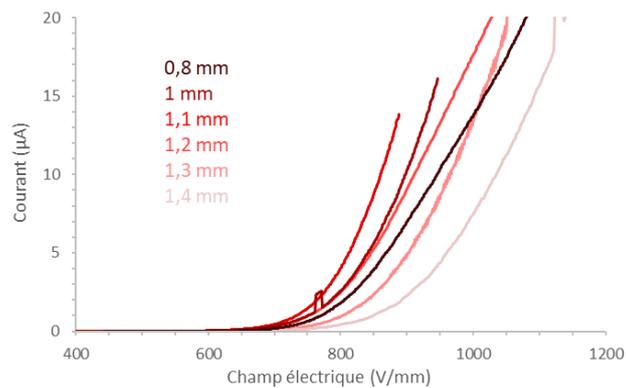


Figure IV-20 : Courbe I-E avec variation de la distance inter-électrode pour l'échantillon S02-R210616-1

Nous avons recensé pour chaque échantillon le champ électrique minimum d'activation avec la distance associée. Nous obtenons un champ d'activation moyen de  $320 (\pm 120) \text{ V}\cdot\text{mm}^{-1}$  pour une distance de  $0,98 (\pm 0,21) \text{ mm}$ .

#### Conclusion

Pour la suite, il sera aussi important de rester à la même distance inter-électrode pour la comparaison des échantillons supprimant ainsi ce paramètre principalement responsable de leur différence d'émission.

Pour l'intégration des nanotubes dans une source d'ions, et de façon à extraire un maximum d'électrons avec un minimum de champ électrique, nous allons donc nous placer entre  $250 \mu\text{m}$ , de façon à suivre les recommandations de Bonard et auquel on ajoute la hauteur de nos nanotubes, et  $1190 \mu\text{m}$ , donné par nos expériences. Cette distance doit être stabilisée pour s'assurer de sa valeur et pour valider la répétabilité des expériences. Des composants en céramique sont envisagés grâce à leurs propriétés isolantes et de dureté.

#### IV.B.3 ÉTUDE LONGUE DURÉE

La Figure IV-21 montre les mesures de durée de vie d'émission ex-situ de l'échantillon SOD20-02 à une pression en régime permanent de  $10^{-7} \text{ mbar}$ . L'échantillon a fonctionné pendant plus de 120 h en fonctionnement continu.

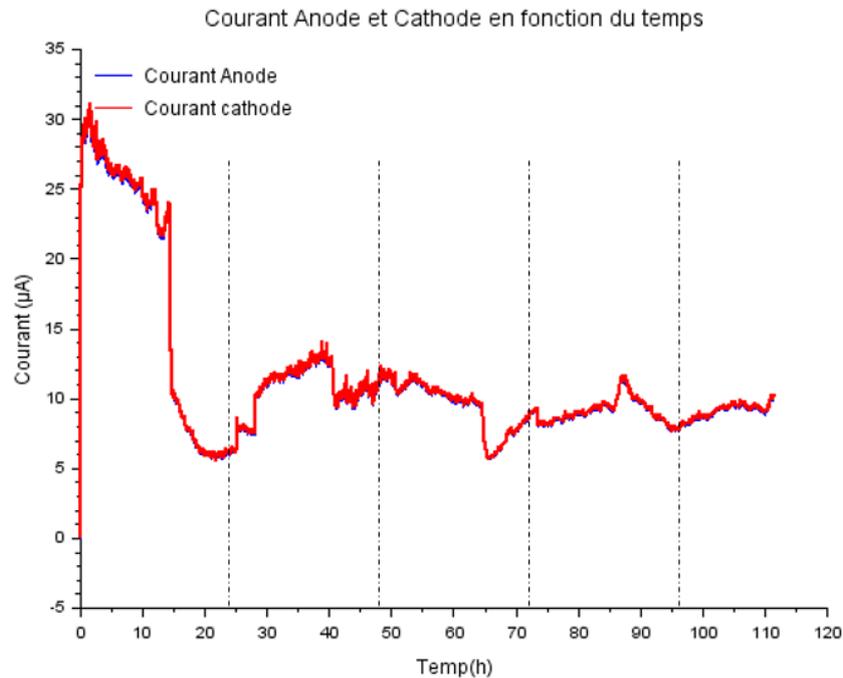


Figure IV-21 : Émission continue à pression constante de  $1E-7$  Barr pendant 120h

Cette figure révèle une persistance de l'émission électrique des nanotubes de carbone malgré une chute soudaine de l'émission au bout de 20h. Ce changement brusque du courant d'émission pourrait s'expliquer par des CNT subissant une déflexion et/ou un arrachement au cours du processus d'émission. Les travaux de Mahapatra (Mahapatra, 2011), se penchant sur la dégradation des CNT, indiquent que les fluctuations transitoires de courant pourraient être induites par des interactions électrodynamiques entre les nanotubes eux-mêmes. Il apparaît que, sous l'influence de ces interactions, les CNT défléchis sont susceptibles de subir une contrainte abrupte, ce qui se traduit par les variations observées du courant d'émission. Il est également noté que le courant d'émission ne s'est pas stabilisé à un niveau constant, mais varie en moyenne autour de  $9,45 (\pm 1,38) \mu\text{A}$ .

Un second test de longue durée représentée par la Figure IV-22, nous a permis de mettre en avant la corrélation entre le phénomène journalier de variation de pression au sein du bâti et le courant émis.

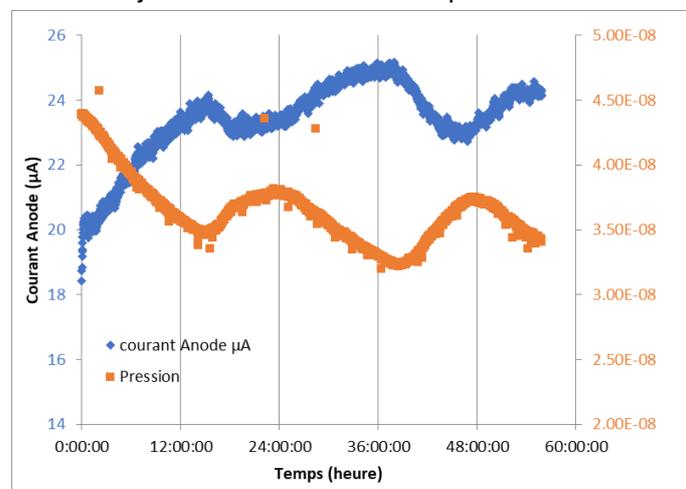


Figure IV-22 : Émission continue avec une variation de la pression au cours de la journée

La capacité d'émissions des CNT sur une longue durée a déjà été prouvée. On retrouve dans la littérature une stabilité de l'émission sur de longues périodes, excédant 20 000 heures pour des dispositifs scellés à une tension constante (Nam, et al., 2005), et même au-delà de 45 000 heures lorsqu'ils sont utilisés en impression écran sur des substrats en verre (H. Furuta, 2011). Ces durées de vie remarquables sont obtenues dans des conditions de vide ultra-élevée.

Lorsque l'on ajoute un gaz, la dégradation lente et progressive des performances des émetteurs CNT au fil du temps, c'est-à-dire un courant constant, peut être compensé par une augmentation progressive de la tension comme effectuée Radauscher en 2015 (Radauscher, 2015), afin de maintenir un courant d'émission électronique constant. Cette dégradation peut être attribuée à plusieurs facteurs, tels que l'usure des CNT par le bombardement ionique et les dommages thermiques des parois latérales causés par le chauffage par effet Joule.

#### IV.B.4 EMISSION EN MODE PULSÉ

L'émission pulsée est l'une des caractéristiques des nanotubes. Afin d'assurer une capture fidèle des performances des formes d'onde de tension et de courant, une série exhaustive de tests de calibration a été réalisée. La génération des pulses est effectuée à l'aide d'un générateur d'impulsions couplé à une alimentation haute tension de type Heinzinger, spécifiée à 20 kV et 30 mA. Les configurations opérationnelles, détaillées sous les modes C/O et GENIE 16, sont exposées dans le Tableau IV-3. Nous avons essayé de nous rapprocher au maximum de l'émission C/O avec un pulse de 50 et non 55  $\mu$ s.

Points de fonctionnement	Temps excitation	Temps répétition	Fréquence	Rapport cyclique électrique
GENIE16	200 $\mu$ s	2000 $\mu$ s	500 Hz	10 %
C/O	55 $\mu$ s	200 $\mu$ s	5000 Hz	27,5 %

Tableau IV-3 : Caractéristiques des points de fonctionnement du tube neutronique

Les données sont directement capturées et enregistrées sur un ordinateur avec un pas de temps de  $2 \times 10^{-8}$   $\mu$ s. On retrouve dans la Figure III-2, un exemple de résultat en émission impulsionnelle répétée. Ce montage fait apparaître un courant capacitif parasite associé à la variation rapide de la tension pulsée appliquée à l'échantillon lors des commutations et qui n'est pas pris en compte dans l'analyse des résultats.

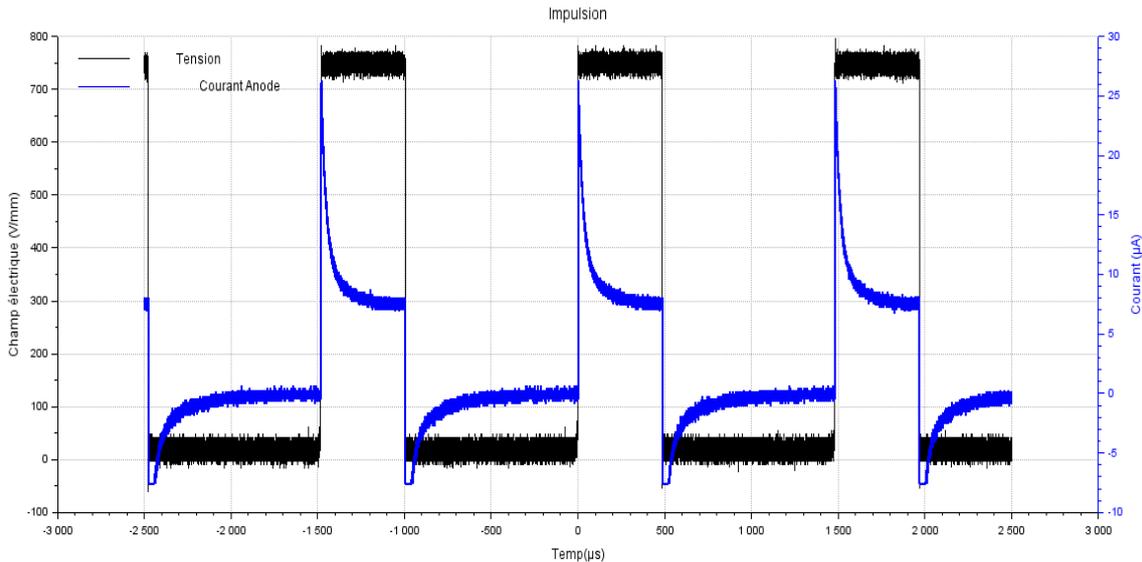


Figure IV-23 : Courant et Tension en mode pulsée de l'échantillon SOD20-02 (Test 56)

On observe une bonne réactivité des nanotubes avec une émission du courant dès la mise sous tension et un arrêt dès l'interruption.

Comparativement au cas d'émission continue, l'émission pulsée permet d'avoir une augmentation des caractéristiques d'émission que l'on constate pour tous les échantillons passant de 4,3 à 8,71  $\mu\text{A}$  pour un champ de  $740 \text{ V}\cdot\text{mm}^{-1}$ . Cette hystérésis constitue une propriété remarquable des nanotubes.

Plusieurs hypothèses mettent en avant ce phénomène comme étant la conséquence d'effets thermiques comme la désorption des couches externes ou la reconstruction à la surface dans un champ électrique entraînant la réduction de la fonction de travail et la croissance du rapport d'amplification de champs. En 2019, Y. Zhang (Y. Zhang, 2019) a simulé la distribution de la chaleur dans un CNT et calculé le temps nécessaire pour que le CNT monte en point de fusion et se refroidissent à température ambiante. Il faut au minimum 2,066  $\mu\text{s}$  pour un CNT de 12  $\mu\text{m}$  de haut.

Une autre hypothèse a été mise en avant en utilisant des impulsions appariées par A.V.Arkipov (A.V. Arkipov, 2007). Le test a été fait deux fois : une première avec des pulses assez éloignées pour laisser le temps à la tension et au courant de revenir à zéro et une seconde fois en rapprochant les pulses de façon à combiner les deux impulsions. Il en résulte qu'avec la combinaison des impulsions, l'émission passe à la branche directe peu après un minimum de tension ce qui ne peut pas être expliqué par des effets thermiques. Il en ressort le modèle d'émission suivant :

$$I_{bs} = B(\exp(bU_s) - 1) \quad (\text{IV-13})$$

Il repose sur l'hypothèse que les électrons sont transférés du volume de l'émetteur dans le vide non directement mais via des états d'énergie intermédiaires « peu profonds »  $N_s$  avec une affinité électronique bien inférieure à la valeur de la fonction de travail ce qui engendre sur une zone surfacique une diminution du potentiel électrique par  $U_s$  (bien inférieur à  $U$  la tension appliquée).

Le courant tunnel  $I_s$  émis dans le vide est alors proportionnel au nombre d'électrons accumulés dans la zone  $N_s$  et de la transparence de la barrière  $\chi_s$  :

$$I = I_{sv} = AN_s U^2 \exp\left(-a \frac{\chi_s^{3/2}}{U}\right) \quad (\text{IV-14})$$

Avec :  $A, B, a$  et  $b$  des constantes

Ce modèle est conforme aux données expérimentales sauf lors des émissions de tension rapides qui peut être expliqué par la redistribution des électrons entre les différents foyers de champs de surface de l'émetteur. Les observations théoriques, corroborées par les équations développées, démontrent clairement que l'augmentation de la tension d'intervalle, conjuguée à l'augmentation du nombre d'états électroniques superficiels ( $N_s$ ) et à la transparence accrue de la barrière de surface, jouent un rôle déterminant dans l'augmentation du courant d'émission. Ces facteurs contribuent ensemble à optimiser la performance des émissions de courant sous forme pulsée. On en retient que pour extraire un maximum de courant, il faut laisser s'éteindre l'hystérésis et donc avoir un intervalle de pulse supérieur à 2  $\mu$ s.

Il est de même important de souligner que les impulsions n'entraînent aucun changement durable des propriétés de l'émetteur de nanotubes de carbone. En effet, les propriétés restent stables, soit un courant identique à tension et pression identiques, même après l'application répétée des impulsions.

#### Conclusion

Les résultats montrent une augmentation significative des caractéristiques d'émission en mode pulsé par rapport au mode continu, avec des courants d'émission passant de 4 à 8  $\mu$ A pour un champ appliqué de 740  $\text{V}\cdot\text{mm}^{-1}$ . Cette hystérésis observée est probablement due à des effets thermiques tels que la désorption des couches externes ou la reconstruction de la surface sous l'effet du champ électrique, ce qui modifie la fonction de travail des électrons et améliore l'amplification du champ. Ce phénomène est bien illustré dans l'étude de Zhang (Y. Zhang, 2019), où il est démontré que la cathode de nanotubes de carbone peut supporter un courant supérieur avant la rupture du vide en mode pulsé par rapport au mode continu. Finalement, il est essentiel de noter que les propriétés des émetteurs de CNT restent stables malgré les impulsions répétées, sans changement durable des propriétés de l'émetteur observé.

#### IV.B.5 VARIATION DU COURANT EN FONCTION DE LA MONTÉE ET DE LA DESCENTE DE TENSION

Selon si la tension augmente ou diminue, à un champ électrique égal, le courant obtenu sera différent. On retrouve dans la Figure IV-24, un exemple de cette divergence de courant émis.

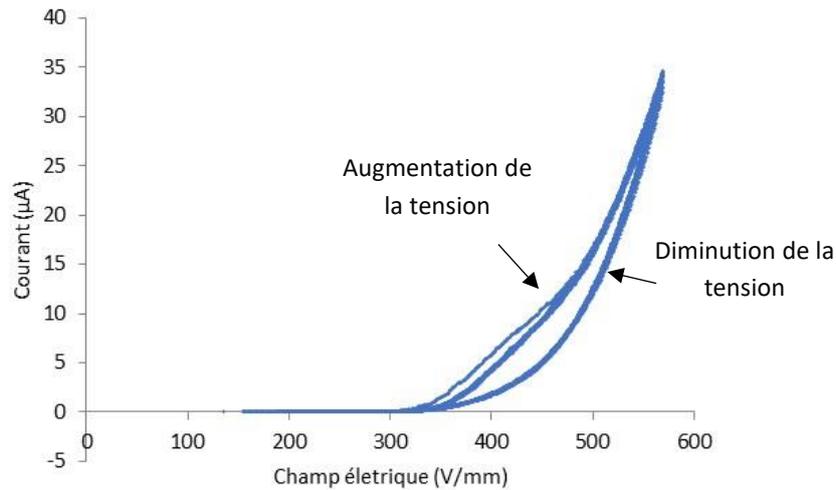


Figure IV-24 : Courant émis en fonction du champ électrique avec mise en évidence de la différence de courant en montée et en descente lors de 12 cycles

Ce phénomène a été de nombreuses fois mis en évidence dans la littérature (S. C. Lim, 2001; Y. Zuo, 2013; Chuanhong Jin, 2005) et reste difficile à expliquer.

### C. ÉTUDE EN TEMPÉRATURE

Pour cette série d'expérimentations, le support a été chauffé à une température de 203°C à l'aide d'un dispositif de chauffage interne. Cette température a été maintenue stable pendant plus de 24 heures afin d'assurer l'uniformité des conditions de test.

L'augmentation de la température a entraîné une dilatation de la tige métallique supportant l'anode, phénomène mesurable grâce au coefficient de dilatation thermique linéaire, ici de  $2,33 \times 10^{-5} \text{ K}^{-1}$ , soit pour une tige de 40 cm :

$$\begin{aligned} \text{Tige aluminium } \Delta l &= \gamma * l_0 * \Delta\theta = 2.33 * 10^{-5} * 400 * |283,15 - 477,15| \\ &= 1.30 \text{ mm} \end{aligned} \tag{IV-15}$$

$$\begin{aligned} \text{Porte Anode } \Delta l &= \gamma * l_0 * \Delta\theta = 17 * 10^{-6} * 42 * |283,15 - 477,15| \\ &= 0.14 \text{ mm} \end{aligned}$$

La distance inter-électrode est donc de :  $7.5 - 0.06 - 5.14 - 1.30 - 0.14 = 0.257 \text{ mm}$

Nous obtenons les résultats présentés dans la Figure IV-25 :

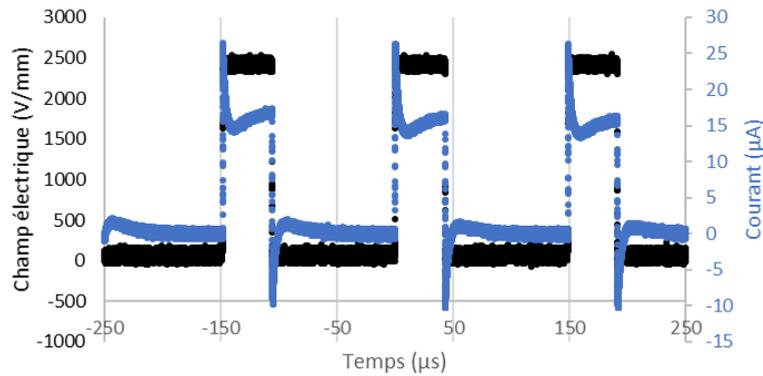


Figure IV-25 : Courant et Tension en mode pulsée

Il est intéressant de noter que la température n'entrave pas l'émission électronique des nanotubes de carbone, avec une émission lors de la mise sous tension comparable à celle obtenue à température ambiante.

En retenant les derniers résultats obtenus en mode pulsé, nous devrions pour cette distance avec une augmentation du courant passant de 12  $\mu\text{A}$  à 15,4  $\mu\text{A}$  en prenant en compte juste l'augmentation du champ électrique à 2 512 V/mm. Au contraire, on retrouve une augmentation notable du courant qui peut s'expliquer deux façons :

- Une distance inter-électrode non maîtrisée
- Une augmentation de l'émission électronique due à la température

La modification de la température aura plusieurs influences sur l'émission électrique mais pas sur la structure même des CNT étant donné qu'ils sont créés sous plasma 600 °C et que leur température de fusion est de 3897 °C. Tout d'abord, il y a un faible impact de la température sur le travail de sortie mis en avant par l'expression de Klein *et al* :

$$\phi(T) = \phi_0 \left[ 1 - \frac{\pi^2}{12} \left( \frac{k_B T}{\phi_0} \right)^2 \right] \quad (\text{IV-16})$$

Aux températures que nous utilisons, cette dépendance est négligeable. Un effet est mis en avant pour une augmentation de 4000 K qui engendre une différence du travail de sortie de 0,5 %.

En second, l'augmentation de la température peut engendrer une émission thermoïonique combinée à l'effet de champs. Plusieurs théoriciens ont combiné ces deux phénomènes dont Millikan et Lauritsen en 1928 de façon à obtenir cette formule :

$$I = A(T + cF)^2 e^{-\frac{b}{T+cF}} \quad (\text{IV-17})$$

En prenant en compte que lorsque le champ appliqué  $F$  est de 0, l'équation est réduite à l'équation thermoïonique habituelle. Lorsque  $T$  est nul ou très inférieur à  $F$ , l'équation se réduit à l'émission de champ. Cela permet lorsque  $T$  est comparable à  $cF$  (avec  $c$  une constante dépendante de la surface et

donc du matériau) de mettre en avant une émission combinée de la température et du champ électrique.

Murphy a, en 1956, étudié l'émission de façon unifiée entre les deux types d'émission, thermoionique et par effet de champ, en établissant des plages de température et de champ électrique de façon à définir le courant dans la région intermédiaire.

À la surface d'un métal, un effet prenant en compte le champ électrique le matériau et la température a lieu : l'énergie de Nottingham. Il correspond à différence entre l'énergie moyenne des électrons émis et l'énergie moyenne de ceux dans le métal.

## D. ÉTUDE EN ATMOSPHÈRE DE DEUTÉRIUM

Pour la suite de nos recherches, nous nous intéressons à l'influence de la présence de gaz d'hydrogène sur l'émission CNT. Dans les tubes neutroniques étudiés, ce gaz est généralement un mélange de deutérium et de tritium, tous deux isotopes de l'hydrogène. Cependant, en raison de la radioactivité du tritium et des impératifs de radioprotection associés, nos tests ont été exclusivement réalisés dans une atmosphère de deutérium.

### IV.D.1 VARIATION DE LA PRESSION

Tout d'abord, il est crucial de rappeler l'existence d'une tension de claquage, notée  $V_c$ , au-delà de laquelle la différence de potentiel entre les électrodes peut entraîner l'apparition d'un arc électrique.

Cet arc provoque un court-circuit et peut causer des dommages irréversibles au tube. La détermination de cette tension se fait selon la loi de Paschen (Paschen, 1889), qui s'exprime comme suit :

$$V_c(pd) = \frac{B * (pd)}{\ln(A * pd)} \quad (IV-18)$$

Avec :  $B$  et  $A$  des constantes dépendantes du gaz et des électrodes

$pd$  est le produit de la pression et de la distance inter-électrodes.

Dans les configurations que nous avons précédemment établies, avec une distance inter-électrode de 0,5 mm et une tension maximale appliquée de 1000 V, il est possible d'extraire directement de la courbe de la Figure IV-26 une valeur de pression pour un gaz de  $H_2$  à 0,05 Torr, soit  $6 \times 10^{-2}$  mbar qui sera alors notre pression maximum durant nos essais.

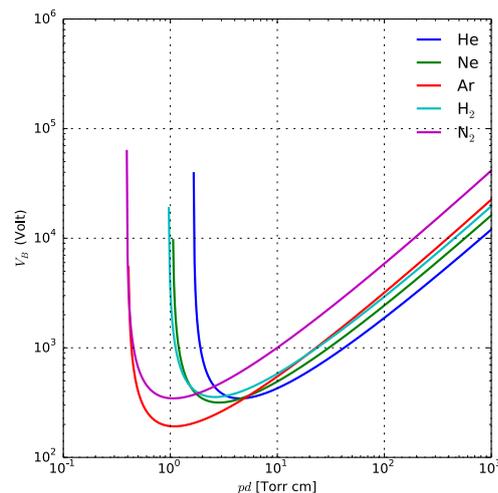


Figure IV-26 : Courbes de Paschen

#### IV.D.2 STOCKAGE DE L'HYDROGÈNE PAR LES CNT

L'étude de l'effet de l'hydrogène sur les nanotubes ne fait pas encore l'objet d'un consensus scientifique. En effet, plusieurs études démontrent une augmentation du courant d'extraction et d'autres une diminution.

Les explications physiques reposent sur le même principe : l'absorption atomique d'hydrogène à l'extrémité des nanotubes (Zhao, 2017; Dong, 2016; Yaghoobi, 2009). Les CNT, en raison de leur cavité interne longitudinale, ont été étudiés pour leur capacité à adsorber l'hydrogène. Ces structures permettent une migration facile des molécules, y compris des molécules de Van Der Waals, à l'intérieur des tubes. Cette propriété a été mise en lumière pour la première fois dans l'étude de la capillarité des fullerènes en 1992 (PEDERSON & BROUGHTON, 1992).

Le stockage de l'hydrogène peut être fait à travers la paroi du nanotube, en modifiant les liaisons C-C sans compromettre la stabilité structurelle des nanotubes. Cette méthode diffère de l'effet de capillarité où l'hydrogène est absorbé par les extrémités des nanotubes. Le processus d'extraction de l'hydrogène implique d'abord la dissociation de la molécule d' $H_2$ , suivie de son adsorption sur la paroi intérieure, puis sa migration vers la paroi extérieure.

Les études sur le stockage de l'hydrogène dans les CNT ont utilisé principalement deux méthodes :

- Méthode haute pression : Cette méthode conduit à la physisorption des molécules d'hydrogène, étendant les distances inter-tubulaires et permettant un stockage maximal de 3 à 6 wt% d'hydrogène, soit 6 % de leur poids. Cependant, la reproductibilité de ces résultats dépend fortement des conditions de préparation des échantillons.
- Méthode électrochimique : Utilisée principalement pour les batteries à hydrogène secondaires, cette méthode voit l'hydrogène se fixer sous forme d'ions aux électrodes de nanotubes de carbone. Néanmoins, la capacité de stockage n'excède pas 1 wt%.

Selon Etienne Rivard en 2019 (Rivard, 2019), via des simulations Monte Carlo, la capacité de stockage de l'hydrogène dans les CNT à simple paroi peut atteindre jusqu'à 10 wt% à des conditions spécifiques température de 298 K et de pression de 10 MPa. Cependant, la plupart des études pratiques montrent des capacités beaucoup plus modestes de 1,2 à 2 wt% (Ariharan, Viswanathan, & Nandhakumar, 2018; Kaskun & Kayfeci, 2018).

De plus, Chahine en 2009 (Chahine, 2009) suggère une référence générale pour l'adsorption de l'hydrogène dans les matériaux à base de carbone, estimant qu'il y a généralement une adsorption de 1 wt% d'hydrogène pour chaque  $500 \text{ m}^2 \cdot \text{g}^{-1}$  de surface, soulignant la corrélation directe entre la surface du matériau et sa capacité d'adsorption.

En 2016, Dong (Dong, 2016) met en avant la chimiabsorption dissociative. Il y étudie via la théorie de la fonction de densité pour la physioabsorption de l'hydrogène par les nanotubes en dissociant deux sites d'adsorption. Il en résulte que l'hydrogène se lie faiblement aux sites carbonés avec une meilleure liaison pour les sites internes aux CNT. De plus, les différentes de comportement entre différents nanotubes dépendraient de la courbure des structures et des interactions électron hydrogène-carbone.

Dong met en avant aussi que les barrières d'énergie potentielle seront facilement surmontées par une agitation thermique à température ambiante ; qui avait déjà mis en avant lors du stockage de l'hydrogène par les nanotubes.

Les propriétés d'émission des cathodes à nanotubes de carbone peuvent donc être modifiées par la présence d'hydrogène. La désorption de l'hydrogène nécessite une augmentation de température, réduisant la capacité de stockage à température ambiante. Les études montrent que l'hydrogène peut être désorbé entre 33 et 47°C (Dong, 2016).

### IV.D.3 EXPÉRIENCES

Pour comprendre les effets du deutérium sur l'émission des CNT, nous avons fait plus d'une dizaine de tests différents en faisant varier la pression, la tension et le temps d'exposition au gaz.

#### IV.D.3.1 Expériences passées

Nous avons comme point de départ effectué un test comparable à celui réalisé par Lucie Sabaut en 2016 présenté par la Figure IV-27 (Sabaut, 2016). Après avoir stabilisé l'émission des CNT, nous avons augmenté la pression au sein du bâti pendant 25 minutes, puis nous sommes revenus sous vide. Il convient de noter que la pression dans nos tubes étant de l'ordre  $1,9 \times 10^{-3}$  mbar, nous ne pouvions maintenir la même pression que celle utilisée par Lucie Sabaut, soit  $5 \times 10^{-7}$  mbar. Nous avons donc augmenté notre pression par paliers successifs jusqu'à atteindre  $7,56 \times 10^{-4}$  mbar. Nous avons obtenu la Figure IV-28.

#### IV. Validation des CNT pour les sources d'ions Penning

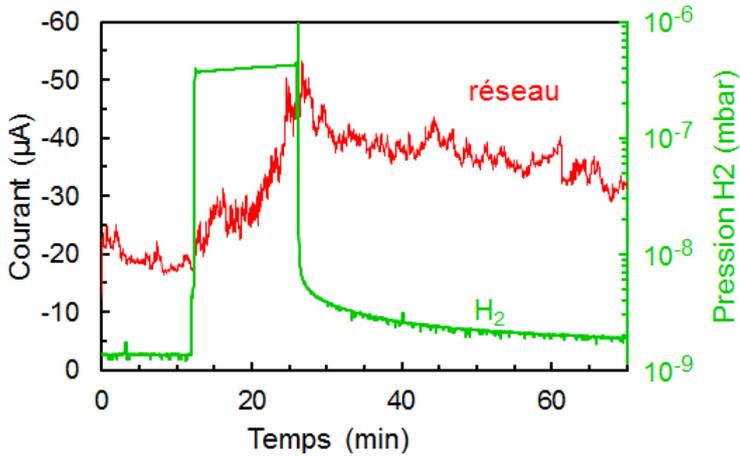


Figure IV-27 : Variation du courant en fonction de la pression en  $\text{H}_2$  par Lucie Sabaut (Sabault, 2016)

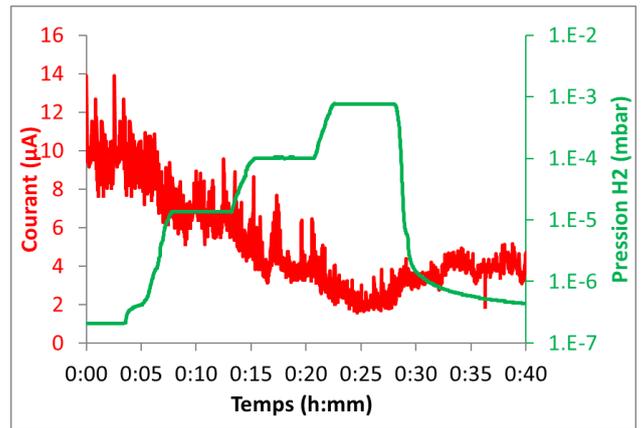


Figure IV-28 : Variation du courant en fonction de la pression en  $\text{H}_2$

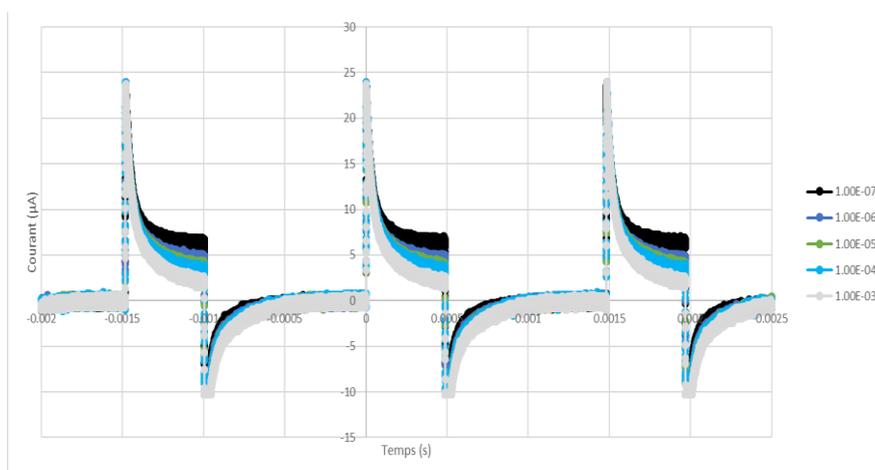
Contrairement aux observations faites par Sabaut, qui relevait une augmentation du courant, nos résultats montrent une réduction significative de l'émission, atteignant une valeur proche de  $2 \mu\text{A}$ .

Lorsque la pression augmente de manière significative, c'est-à-dire à chaque changement de palier, le courant semble également diminuer, ce qui pourrait indiquer que le système est sensible à la pression du gaz. De façon inverse, lorsque nous rétablissons le vide dans l'enceinte (à  $10^{-7}$  mbar), le courant augmente, passant de  $2$  à  $4 \mu\text{A}$ .

Par la suite, sans aucune intervention supplémentaire, le courant se stabilise autour de  $4 \mu\text{A}$ .

#### IV.D.3.2 Expérience en mode pulsé

Nous avons voulu voir si cette diminution persistait en mode pulsé. Pour cela, nous avons, pour un même échantillon, augmenté et stabilisé la pression à différentes valeurs. Sans phase de dégazage, nous avons directement testé l'émission pendant 15 minutes à chaque pression. Cela nous a permis d'obtenir la Figure IV-30Figure IV-29.



Pression (mbar)	Courant plateau ( $\mu\text{A}$ )
$10^{-7}$	6,69
$10^{-6}$	4,96
$10^{-5}$	4,33
$10^{-4}$	3,86
$10^{-3}$	2,45

Figure IV-29 : Courant en fonction de la pression  $\text{H}_2$  en mode pulsée

Chaque courbe montre la réponse en courant en fonction du temps pour différentes pressions, de  $1 \times 10^{-7}$  à  $1 \times 10^{-3}$  mbar. Les pics de courant correspondent à la phase d'émission pulsée et sont suivis de retombées immédiates, indiquant l'arrêt de l'émission.

L'information majeure observable est que le pic de courant diminue à mesure que la pression augmente. Par exemple, alors que le courant plateau atteint près de  $6,69 \mu\text{A}$  à  $10^{-7}$  mbar, il chute à environ  $2,45 \mu\text{A}$  à  $10^{-3}$  mbar.

Cependant, malgré l'augmentation de la pression, il n'y a pas d'inhibition complète de l'émission de courant. L'émission reste notable même à la pression la plus élevée testée, indiquant que les CNT maintiennent une certaine efficacité d'émission en présence de gaz à des pressions accrues.

#### IV.D.3.3 Variation de pression et de tension

Pour la suite nous avons fait varier à différente pression, la tension appliquée au CNT. Nous avons cherché à comprendre si une variation de tension pouvait réduire l'impact de l'hydrogène sur l'émission électronique des CNT. Pour chaque courbe, nous avons t'abord stabiliser la pression puis effectué des phases de montée et de descente similaire à la phase de vieillissement décrite dans Figure IV-14. Puis nous avons effectué une augmentation et une diminution de la tension de façon à obtenir les courbes I-E de la Figure IV-30.

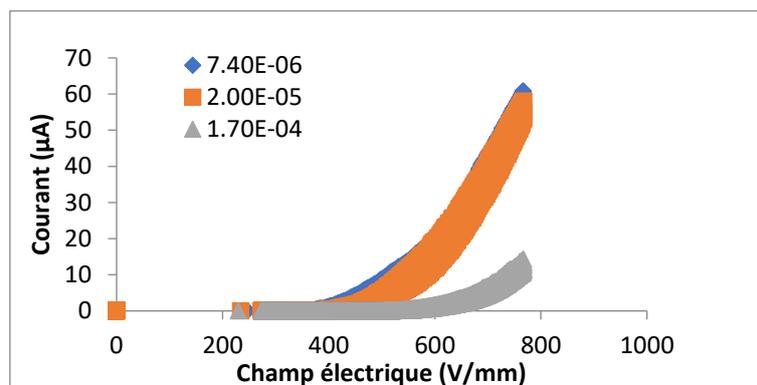


Figure IV-30 : Courbes I-E en fonction de la pression en  $\text{H}_2$

La figure jointe montre les courbes I-E pour trois plages de pression différentes :  $7.4 \times 10^{-6}$  mbar,  $2 \times 10^{-5}$  mbar, et  $1.7 \times 10^{-4}$  mbar. Les courbes pour :  $7.4 \times 10^{-6}$  mbar,  $2 \times 10^{-5}$  mbar présentent une similarité remarquable, indiquant une émission de courant cohérente lors de la montée et de la descente de tension, ce qui suggère que l'effet de l'hydrogène sur l'émission de courant est limité ou gérable à ces niveaux de pression.

Cependant, à et  $1.7 \times 10^{-4}$  mbar, la courbe montre un effondrement prononcé, caractérisé par une chute drastique de l'émission de courant, même sous des tensions élevées. Cela dénote un point de rupture où l'augmentation de la pression d'hydrogène exerce un effet suffisamment négatif pour impacter l'émission de courant de manière significative. Cette observation pourrait indiquer un seuil

de concentration d'hydrogène à partir duquel les interactions entre les molécules d'hydrogène et les électrons deviennent prépondérantes, réduisant ainsi l'efficacité de l'émission de champ des CNT.

On retrouve ce même effet dans la Figure IV-31. Cette fois-ci l'augmentation de la tension est effectuée par palier toutes les 10 minutes. À des pressions de  $10^{-6}$  et  $10^{-5}$  mbar, les courants observés sont soit équivalents, soit supérieurs à ceux obtenus dans des conditions de vide. Cette observation est conforme aux résultats publiés par Lucie Sabaut sur la Figure IV-30 et pourrait être attribuée à un effet de champ amplifié ou à une diminution de l'interaction gaz-électron qui se produit généralement à basse pression.

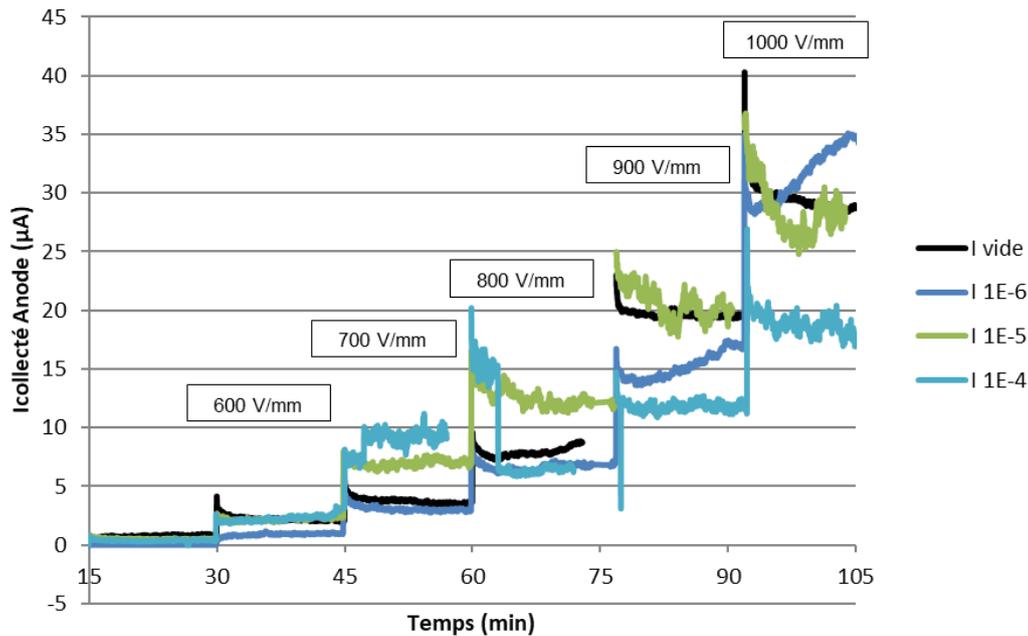


Figure IV-31 : Augmentation par palier de la tension pour différentes pressions d'H2

À  $10^{-4}$  mbar et 800 V/mm, une chute brutale du courant est enregistrée. Cette chute suggère une limite de fonctionnement ou une instabilité du processus d'émission due à une interaction accrue entre les molécules de gaz et les électrons émis, ou peut-être à un début de saturation du champ ou de dégradation des pointes émissives des CNT.

Après la chute du courant à  $10^{-4}$  mbar l'émission ne revient pas aux valeurs de courant observées dans les conditions de vide, même après la diminution de la tension. Cela pourrait indiquer des dommages irréversibles aux CNT ou une modification permanente des conditions de surface qui affectent l'émission de champ.

#### IV.D.3.4 Réversibilité

Nous avons voulu savoir si quel que soit notre test, l'hydrogène avait ou non eu un impact sur l'émission des CNT. Pour cela, nous avons comparé trois tests identiques faits sur le même échantillon et retranscrit dans la Figure IV-32 :

- Avant la mise sous H<sub>2</sub>
- Après l'utilisation sous H<sub>2</sub> et une phase de vieillissement

- Après l'avoir sorti du bâti

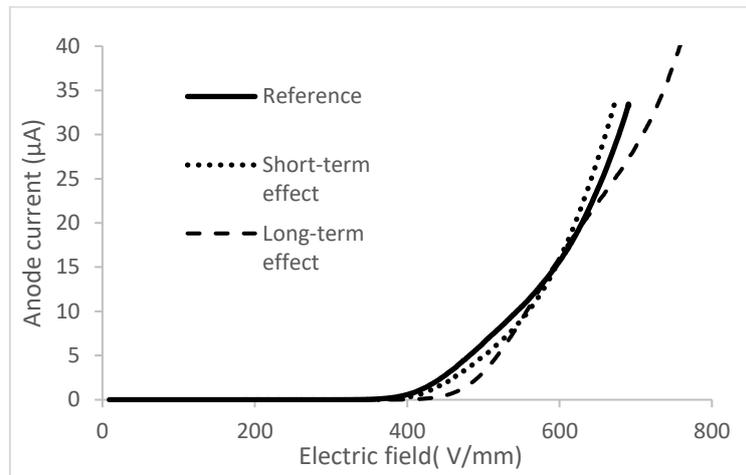


Figure IV-32 : Courbe I-E après mise sous gaz de  $H_2$

L'analyse de la figure démontre que, malgré une légère variation dans les courbes d'émission à court terme, l'émission de courant revient à des niveaux comparables à la courbe de référence à long terme. Cela suggère que l'hydrogène ne provoque pas d'altération permanente des capacités d'émission des CNT. L'ionisation du gaz, susceptible de causer des dommages par bombardement ionique sur les pointes des CNT, ne semble pas entraîner de dégradation irréversible.

Les trois courbes convergent vers un comportement similaire aux champs électriques élevés, ce qui renforce l'hypothèse selon laquelle l'hydrogène n'a pas d'impact significatif à long terme sur l'émission électronique des CNT. Cette conclusion est importante car elle indique que les CNT sont un matériau résilient pour les applications où l'exposition à l'hydrogène est une considération opérationnelle, tels que les tubes neutroniques et les détecteurs de gaz. La récupération des propriétés d'émission après retrait de l'hydrogène et le temps de repos suggèrent que les CNT peuvent être utilisés de manière répétitive dans des environnements contenant de l'hydrogène sans perte significative de fonctionnalité.

## E. RÉPÉTIBILITÉ

Notre dernière étude porte sur la répétabilité des échantillons. Pour cela, nous avons commandé cinq échantillons d'un lot identique ayant fabriqué suivant la même recette c'est-à-dire avec les mêmes paramètres de croissances. Nous cherchons à savoir s'il est possible d'obtenir les mêmes caractéristiques d'émission d'un échantillon à un autre.

Nous avons tout d'abord eu une variation physique de la taille de l'échantillon retranscrit dans le Tableau IV-4 La taille des dépôts varie de près de 22 % allant de 79,8  $mm^2$  à 65,8  $mm^2$ . Cela vient du fait que le *dip-coating*, initialement automatisé, a été, pour cette série d'échantillons, réalisé manuellement, entraînant des espaces de croissances variables.

#### IV. Validation des CNT pour les sources d'ions Penning

NOM	TAILLE (MM <sup>2</sup> )
1018-SOD1	72,92
1019-SOD2	68,11
1012-SOD3	79,82
1019-SOD4	65,84
1027-SOD5	66,35

TABLEAU IV-4 : VARIATION DES TAILLES D'ÉCHANTILLONS

Pour ces cinq échantillons, nous avons fait varier la tension d'émission à des distances constantes. Nous nous attardons ici, sur leur émission maximum à un champ électrique équivalent de 1,1 kV/mm, retranscrit dans la Figure IV-31 . Nous obtenons, sur l'ensemble des échantillons, une émission moyenne de 30,26  $\mu$ A. Les boîtes à moustache illustrent également la dispersion des mesures autour de la médiane avec les quartiles supérieur et inférieur, reflétant ainsi la variabilité dans les performances d'émission sur un même échantillon.



Figure IV-33 : Comparaison des courants d'émission pour 5 échantillons à 1 100 V/mm

Bien que la taille physique des échantillons varie, comme indiqué dans le Tableau IV-4, les données montrent une certaine cohérence dans l'émission de courant, suggérant que la recette de croissance utilisée pour les CNT est relativement fiable.

Les extrémités des moustaches représentent les valeurs minimales et maximales (à l'exception des points aberrants), montrant que, même avec la variabilité des tailles d'échantillons, il n'y a pas de valeurs extrêmes qui indiqueraient une anomalie significative dans le processus de croissance ou d'émission.

Nous pouvons en conclure qu'une même recette de croissance produit des échantillons ayant une émission de courant relativement uniforme lorsqu'ils sont exposés à un champ électrique similaire.

Toutefois, il convient de noter que des variations mineures existent qui peuvent être compensées par une modification de la tension appliquée. Avec ces échantillons nous avons obtenu jusqu'à une émission de 105  $\mu\text{A}$  pour un champ électrique de 1,36 kV/mm.

## F. CONCLUSIONS GÉNÉRALES

### IV.F.1.1 Récapitulatif des résultats

De façon résumée, nous pouvons extraire l'ensemble des conclusions obtenues via ces tests.

Premièrement, il a été démontré que le banc d'essais Sodern peut mesurer des courants de manière stable, y compris à différentes tensions, avec une précision de mesure allant jusqu'à  $10^{-4}$   $\mu\text{A}$ . Les courants collectés sur la Cathode et sur l'Anode sont identiques, ce qui valide l'adéquation de l'appareillage pour les mesures.

L'importance du parallélisme a également été mise en évidence dans nos essais, influençant le champ électrique et donc l'émission de manière exponentielle, conformément à la loi de Fowler-Nordheim. Pour garantir la répétabilité des mesures, il est conseillé de stabiliser la distance inter-électrodes avec des entretoises. De plus, cette distance doit se situer entre 250  $\mu\text{m}$  et 1190  $\mu\text{m}$ .

En mode pulsé, une nette augmentation des caractéristiques d'émission a été observée, avec un courant passant de 4 à 8  $\mu\text{A}$  sous un champ de 740 V/mm, indiquant une réponse immédiate favorable aux applications qui requièrent des réactions rapides aux stimuli électriques, comme c'est le cas pour les sources d'ions.

À une température élevée de 203°C, il a été constaté que l'émission électrique des CNT était stable et n'ayant pas d'effet délétère sur les CNT.

La longévité des CNT a été validée pour plus de 100 heures d'utilisation continue à une pression constante de  $10^{-7}$  mbar. Ce résultat montre la durabilité des CNT sous des conditions d'utilisation prolongée.

Sous deutérium, il a été observé que la présence de ce gaz entraînait une diminution du courant, mais les propriétés émissives des CNT étaient restaurées après une phase de vieillissement et une réexposition au vide, indiquant aucune altération à long terme des CNT.

Finalement, des essais de répétabilité ont prouvé que des échantillons similaires produisaient des émissions cohérentes, même si le courant émis pouvait être modifié par l'ajustement de la tension appliquée.

#### IV.F.1.2 Synthèse

Globalement, les expériences ont démontré que les CNT sont des émetteurs électroniques fiables et robustes sous diverses conditions expérimentales, satisfaisant les critères essentiels pour leur application envisagée dans les sources d'ions des tubes neutroniques. On retrouve dans le Tableau IV-4, les conclusions de chaque expérience.

Expérience	Conclusion
Bâti	Validation du bâti et de l'utilisation des CNT
Distance	Stabiliser la hauteur inter électrode avec des entretoises pour une meilleure répétabilité
Pulsée (réactivité)	Réactivité immédiate Émission électronique augmentée
Température	À 203°C, pas d'impact sur l'émission électronique
Longue durée	Validation longévité supérieur à 100 heures
Deutérium	Diminution du courant Mise en place de grille Pas d'impact sur l'émission électronique à long terme
Répétabilité	Ensemble des échantillons émetteurs Variation du courant par gestion de la tension appliquée

Tableau IV-4 : Synthèse des essais sur les CNT

Les deux prochains chapitres seront donc dédiés à leur intégration dans une source d'ions de type Penning avec un dans un premier temps une analyse menée par simulation numérique et dans un second temps une étude expérimentale sur des maquettes testées sur un nouveau moyen d'essais.



## V. OPTIMISATION PAR SIMULATION NUMÉRIQUE D'UNE SOURCE D'IONS INTÉGRANT DES CNT

---

Au chapitre précédent, nous avons identifié la possibilité d'intégrer les nanotubes de carbone au sein de notre source d'ions de Penning. Ce chapitre montre le cheminement pour parvenir à cette intégration, en s'appuyant sur des simulations réalisées via le logiciel CST Studio Suite® édité par Dassault Systèmes (<https://www.3ds.com/fr/produits-et-services/simulia/produits/cst-studio-suite/>). Par la suite, nous utiliserons l'appellation CST pour désigner le logiciel.

Nous débuterons par exposer notre démarche et les raisons pour lesquelles CST se présente comme l'outil adapté à nos besoins. Ensuite, nous mettrons l'accent sur la source d'électrons, c'est-à-dire la géométrie utilisée pour extraire les électrons des CNT. Nous aborderons ensuite l'intégration de cette source dans le reste du système, en détaillant les choix géométriques et l'influence de ces dernières sur le fonctionnement global. Enfin, nous trouverons les paramètres de champs électromagnétiques associés à la géométrie choisie.

Le but de ce chapitre est de trouver une architecture de source d'ions intégrant les CNT et ayant un courant ionique extrait supérieur à celui de notre source d'ions actuelle.

### A. DÉMARCHE

Pour rappel une source d'ions de Penning est une source d'ions à cathode froide, qui fonctionne en ionisant un gaz à faible pression grâce à une production naturelle d'électrons, confinés à l'aide d'un champ magnétique généré par un aimant permanent. Ce processus génère les ions nécessaires à la réaction de fusion nucléaire à l'origine des neutrons émis par le tube (voir chapitres I et II).

À Sodern, cette source est remplie d'un mélange de deutérium et de tritium à très basse pression, entre quelques  $10^{-4}$  et  $10^{-2}$  mbar, initialement sous forme moléculaire diatomique  $D_2$  et  $T_2$ . Il comprend les éléments suivants, représentés dans la Figure V-1 :

- Cathode 1 à la masse électrique (0 V) ;
- Aimant permanent générant un champ magnétique ;
- Anode typiquement à +2000 V ;
- Cathode 2 émettrice des ions, également à la masse électrique (0 V).

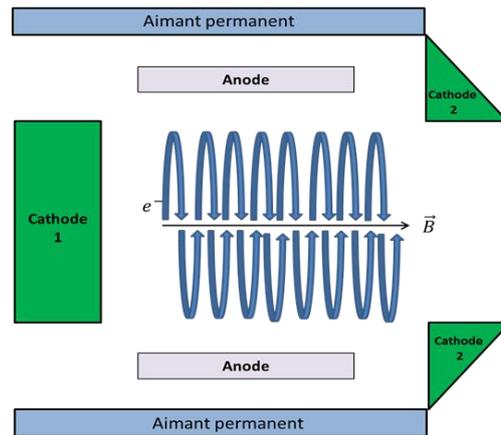


Figure V-1 : Représentation schématique d'une source d'ions Penning

En regard, on retrouve une électrode accélératrice (polarisée entre -50 kV et -100 kV) et une cible au même potentiel que l'électrode accélératrice et positionnée derrière cette dernière.

Pour modéliser cette source avec précision, il est essentiel de recourir à un logiciel de simulation capable de gérer simultanément la simulation de champs électriques et magnétiques, ainsi que le transport des électrons et les interactions entre les particules et la matière, le tout en 2D axisymétrique ou en 3D. Pour cette modélisation, un logiciel se distingue : CST Studio Suite®.

CST est un code par éléments finis, dont une partie est spécifique à l'électromagnétisme, qui permet des modélisations en régime stationnaire (mode Particle Tracking) et en régime dynamique (mode PIC pour Particle-in-Cell et mode ES-PIC pour Electrostatic Particle-in-Cell). Édité par Dassault Systèmes (3DS), cet outil permet, entre autres :

- Importer et exporter des pièces 3D à partir d'autres outils CAO.
- Calculer un maillage optimisé avec des cellules tétraédriques ou hexaédriques selon la méthode numérique choisie pour résoudre le problème.
- Générer des particules chargées dans un champ électromagnétique suivant des lois d'émission bien connues, comme la loi thermoïonique par exemple.
- Calculer les trajectoires des particules chargées, qu'elles soient stationnaires ou dynamiques.
- Gérer les interactions de base entre les particules, telles que l'ionisation élastique primaire ou l'émission d'électrons secondaires.
- Traiter les résultats des simulations a
- Avec divers outils de visualisation (animations, projections dans le plan, etc.).

Nous avons opté pour l'utilisation de CST, comparativement à d'autres solutions concurrentes telles que COMSOL Multiphysics® (<https://www.comsol.com/>), Vsim (<https://txcorp.com/vsim/>) ou bien SIMION (<https://simion.com/>) car ce logiciel est déjà en place et utilisé activement chez Sodern depuis 2019, offrant ainsi une solution éprouvée et intégrée à nos infrastructures existantes.

## B. CST STUDIO SUITE

L'application CST est divisée en 4 domaines qui regroupent 17 solveurs regroupés dans Figure V-2.

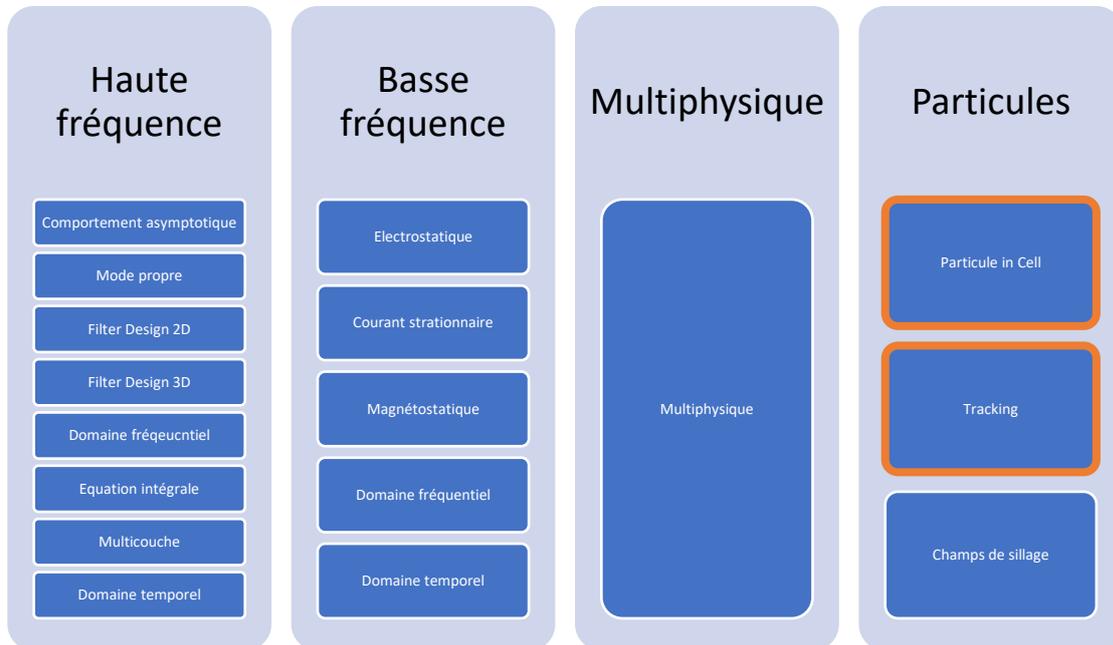


Figure V-2 : Domaine et Solveurs disponibles sur CST

Nous allons par la suite présenter les deux solveurs que nous utilisons pour notre application : le *PIC (Particle-In-Cell) Solver* et le *Tracking Solver*.

### V.B.1 SOLVEURS

#### V.B.1.1 Mode PIC et ES-PIC

Les modes PIC (*Particle-In-Cell*) et ES-PIC (*ElectroStatic Particle-In-Cell*) permettent de calculer les caractéristiques du mouvement des particules dans un plasma en fonction du temps, et sont, en ce sens, particulièrement adaptés à notre étude.

En mode PIC, la dynamique des particules chargées est déterminée par la résolution explicite des équations de Maxwell. À chaque pas de temps  $\delta t$ , les champs électrique et magnétique sont calculés sans approximation, ce qui permet de prendre en compte les phénomènes non-linéaires. Toutefois, le pas de temps  $\delta t$  est conditionné par le maillage et varie à chaque cellule. Il en résulte que ce mode a l'inconvénient d'être très coûteux en temps de calcul.

Dans l'hypothèse où le courant généré par le plasma est suffisamment faible pour que l'on puisse ignorer le champ magnétique auto-induit, il est possible de considérer le champ électromagnétique comme statique, et ainsi d'utiliser les simulations ES-PIC. Celles-ci reposent sur la résolution de l'équation de Poisson et sont donc moins coûteuses en temps de calculs que les simulations PIC. Le mode ES-PIC permet d'étudier les aspects transitoires mais sans prendre en compte les aspects radiofréquences (régime quasi-statique). Par exemple, nous pouvons obtenir le courant dans la source

d'ions, le courant d'ions extraits en fonction du temps et le profil du faisceau d'ions sur la cible. Nous avons choisi d'utiliser ce mode pour valider les simulations du logiciel CST Studio.

Dans le cas de la modélisation d'un plasma, afin de s'assurer que le code converge, il est nécessaire de vérifier certaines conditions. Premièrement (en mode PIC), le pas de temps  $\delta t$  (en s) des simulations doit être suffisamment petit pour pouvoir résoudre les oscillations les plus rapides du plasma de fréquence  $\omega_{max}$  (en rad/s). Les électrons étant plus mobiles que les ions, ce sont eux qui vont imposer la condition de stabilité sur le pas de temps  $\delta t$ . La fréquence  $\omega_{max}$  désigne alors le maximum de la fréquence d'oscillation du plasma  $\omega_{pe}$  et de la fréquence cyclotron  $\omega_{ce}$ . Dans notre cas, cette condition correspond à la relation (V-1).

$$\delta t < \frac{0,1 \times 2\pi}{\omega_{max}} \approx \frac{0,1 \times 2\pi}{\omega_{pe}} \quad (V-1)$$

En pratique, dans le code CST Studio, le pas de temps  $\delta t$  est défini par la relation (V-2) dans laquelle  $\Delta t$  désigne la durée maximale de la simulation (en s) et  $Nt_{step}$  le nombre de pas. Nous voyons là que la durée  $\Delta t$  de notre étude va être fortement limitée par le coût en temps de calcul imposé par le nombre de pas  $Nt_{step}$ .

$$\delta t = \frac{\Delta t}{Nt_{step}} \quad (V-2)$$

Nous avons vu précédemment les électrons pouvaient être considérés de manière collective pour une distance caractéristique. Il en résulte qu'afin d'obtenir une précision suffisante pour la résolution spatiale, le pas en longueur  $\delta x$  (en m) — qui correspond à la dimension de la plus petite maille du maillage — doit être inférieur à la longueur de Debye  $\lambda_D$ . Nous avons la condition (V-3).

$$\delta x < \lambda_D \quad (V-3)$$

Pour finir, les particules ne doivent pas traverser un grand nombre de cellules du maillage lors du pas de temps  $\delta t$ . Cette condition décrite par la relation (V-4) permet de calculer de manière précise la force de Lorentz associée au déplacement des électrons et des ions et d'en déduire la densité de courant sur le maillage. La vitesse  $v_{max}$  (en m/s) désigne la vitesse maximale atteinte par les électrons ou les ions.

$$\delta t < \delta x / v_{max} \quad (V-4)$$

### V.B.1.2 Mode Tracking solver

Le dernier solveur que nous avons utilisé est le solveur *Tracking* qui permet de modéliser le comportement des particules en calculant l'effet des champs électromagnétiques statiques et de la charge d'espace avec le « *gun iteration* ». Les équations utilisées sont dépendantes de la position et du moment des particules :

$$\text{Pour le moment : } \frac{d}{dt}(m\vec{v}) = q(\vec{E} + \vec{v} \times \vec{B}) \quad (\text{V-5})$$

$$m^{n+1} + \vec{v}^{n+1} = m^n \vec{v}^n + q\Delta t (\vec{E}^{n+1/2} + \vec{v}^{n+1/2} \times \vec{B}^{n+1/2}) \quad (\text{V-6})$$

$$\text{Pour la position : } \frac{d\vec{r}}{dt} = \vec{v} \quad (\text{V-7})$$

$$\vec{r}^{n+3/2} = \vec{r}^{n+1/2} + \Delta t \vec{v}^{n+1} \quad (\text{V-8})$$

Avec :  $m$  la masse ;  
 $\vec{v}$  le vecteur vitesse ;  
 $\vec{E}$  le vecteur du champ électrique ;  
 $\vec{B}$  le vecteur du champ magnétique.

Puisque les champs électriques et magnétiques sont calculés sur une grille de calcul, il est nécessaire d'interpoler les champs à la position des particules avec un schéma d'interpolation. Il est possible de rajouter la charge d'espace et de courant résultant des particules en mouvement.

Ce solveur utilise ce qu'il appelle un « gun interaction » défini comme une application itérative du solveur électrostatique et du suivi des particules. Après avoir calculé le champ électrostatique, les particules sont émises et leur charge d'espace est surveillée. Cette charge d'espace est utilisée pour modifier la vectrice source dans le système d'équations du solveur électrostatique. Ensuite, un nouveau champ électrostatique est calculé qui intègre une certaine connaissance de la trajectoire de vol des particules. Cette procédure est répétée jusqu'à ce que la différence relative du courant émis et de la charge d'espace satisfasse un critère de convergence. Il est possible de vérifier la convergence depuis d'une courbe calculée (Figure V-3) à partir de la différence relative de la distribution de charge  $q$  entre deux étapes de calcul ultérieures (étapes  $i$  et  $i + 1$ ) :

$$\delta_{dB} = 20 \log_{10} \left( \frac{|\vec{q}_{i+1} - \vec{q}_i|}{|\vec{q}_{i+1}|} \right) \quad (\text{V-9})$$

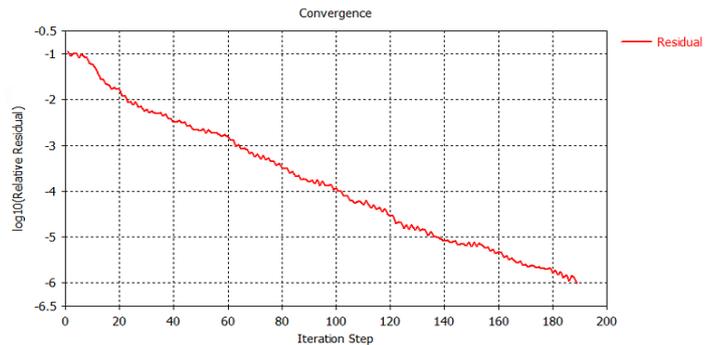


Figure V-3 : Convergence du solveur électrostatique

Lors de chaque calcul de suivi, un seul ensemble de particules est émis mais la trajectoire et les champs électromagnétiques résultants reflètent le comportement d'un faisceau de particules continu. Ce type de simulation de pistolet auto-cohérent est uniquement capable de simuler un faisceau de particules en régime permanent et ne peut pas être utilisé pour simuler des effets transitoires en tant que caractéristique de commutation d'une source émettrice.

La simulation en mode Tracking prend toujours en compte toutes les particules et toutes les étapes de temps, indépendamment des paramètres d'échantillonnage. Les paramètres d'échantillonnage de trajectoire sont uniquement utilisés pour réduire la quantité de données pour le tracé de la trajectoire. Pour limiter le temps de simulation, nous avons réglé un échantillonnage de trajectoire adaptatif à un angle de 0,5°.

## V.B.2 PARAMÈTRES

Il est intéressant de regarder comment CST considère différents paramètres essentiels à la physique de la source.

### V.B.2.1 Source d'électrons

La définition de la source de particules détermine la géométrie d'émission de la source, tandis que les paramètres physiques de l'émission sont définis par le modèle d'émission de particules qui est attribué à la source de particules. En général, le modèle d'émission influence les conditions sous lesquelles l'émission se produit ainsi que les propriétés des particules émises, telles que la charge macroscopique, la vitesse, etc.

Pour commencer, il est nécessaire de sélectionner une face émettrice pour la source de particules. Cette face peut prendre diverses formes, telles qu'une pointe, une surface cylindrique, ou même un volume entier. Une fois la source choisie, elle est triangulée et les points centraux des triangles formés deviennent les points d'émission des particules.

La résolution de la grille de triangulation peut être orientée soit vers le modèle d'émission, soit vers le maillage lui-même. Un ajustement automatique de la densité d'émission garantit que, même dans les conditions les moins favorables, il y aura un ou plusieurs points d'émission dans chaque cellule de maillage émissive. Cette approche assure une répartition uniforme et efficace des particules émises à partir de la surface sélectionnée

#### V.B.2.1.1 Paramètres cinétiques

Il existe deux modèles parmi lesquels choisir pour définir les réglages cinétiques :

- Modèle de distribution uniforme. Cela signifie que le type cinétique choisi, qu'il s'agisse de la vitesse, de l'énergie ou de la température, est distribué de manière uniforme sur l'intervalle spécifié. Un paramètre de dispersion cinétique est également introduit pour représenter la variation de la valeur cinétique comme un pourcentage de la valeur moyenne donnée.
- Distribution Maxwell-Boltzmann. Ce modèle est utilisé pour caractériser la distribution de la vitesse des particules à une température donnée.

Etant donné que nous n'utilisons pas de température dans notre source, il nous a paru préférable d'utiliser la distribution uniforme.

Il est de même possible de modifier la dispersion angulaire, c'est-à-dire les particules sont émises strictement perpendiculairement à la surface de la source ou si elles peuvent être émises à des angles aléatoires autour de la normale. Dans le système de coordonnées sphériques locales d'une particule, représenté par la Figure V-4, où l'axe  $O_z$  est défini par la normale de surface locale, l'angle  $\theta$  (ou angle polaire) suit une distribution uniforme dans l'intervalle  $[0, \delta)$ , où  $\delta$  représente la dispersion angulaire.

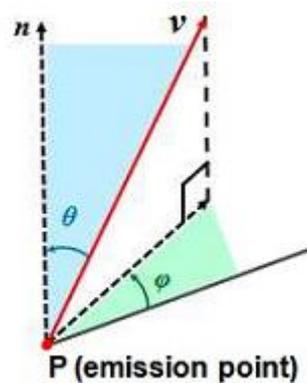


Figure V-4 : Paramètre de la dispersion angulaire

### V.B.2.1.2 Modèles d'émission : Modèle d'émission de champs

Outre les paramètres cinétiques, les conditions sous lesquelles l'émission se produit et le courant émis peuvent être configurés via un modèle d'émission. CST peut générer plusieurs types de modèle d'émission électronique dont :

- Modèle d'émission fixe
- Modèle limité par la charge d'espace
- Modèle d'émission de gaine plasma
- Modèle thermoionique
- Modèle d'émission induite par un champ
- Modèle d'émission d'électrons induite optiquement

Nous allons nous concentrer sur le modèle d'émission induite par un champ, utilisé pour nos CNT et pour l'émission des parois internes de notre source. Les valeurs enregistrées sont utilisées pour des surfaces planes auquel un champ électrique intense ( $10^9$ - $10^{10}$  V·m<sup>-1</sup>) est appliqué. La densité de courant à la surface est décrite par cette formule dérivée de celle de Fowler-Nordheim (V-10) :

$$J = a E^2 \exp\left(-\frac{b}{|E|}\right) \quad (\text{V-10})$$

Avec :  $a$  et  $b$  des constantes dépendantes des matériaux qui englobent le travail de sortie et la surface d'émission ;  
 $E$  est la valeur du champ électrique ;  
 $J$  est la densité de courant.

### V.B.2.2 Émission secondaire

L'émission secondaire électronique joue un rôle important dans l'ionisation du gaz et doit être prise en compte pour comparer les données expérimentales à celles obtenues par simulation. Pour rappel, l'émission d'électrons secondaires (SEE) est un phénomène courant induit par l'interaction d'électrons à haute énergie avec une paroi. Le coefficient d'émission, appelé rendement, des électrons secondaires peut être donné par :

$$\delta = \frac{i_{\delta}}{i_i} \quad (V-11)$$

Avec :  $i_{\delta}$  courant total d'émission ;

$i_i$  courant du faisceau d'électrons incident

$\delta$  dépend de l'énergie ( $E_0$ ) du faisceau d'électrons incident, de l'angle du faisceau d'électrons incident, de la composition chimique et de l'état de la surface du matériau irradié.

Il existe trois types élémentaires d'électrons secondaires (Figure V-5) :

- Les électrons réfléchis élastiques : l'électron subit une collision élastique à la surface et est réfléchi ( $I_b$ ) ;
- Les rétrodiffusés : l'électron se déplace dans le matériau et est renvoyé hors du matériau ( $I_{rd}$ ) ;
- Les vrais secondaires : l'électron se déplace dans le matériau et en raison de collisions, d'autres électrons sont dispersés en dehors du matériau ( $I_{ts}$ ).

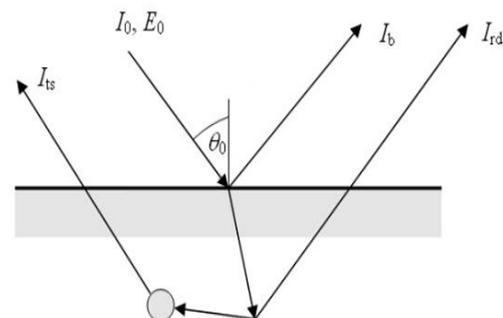


Figure V-5 : Schéma de la production d'électrons secondaires

CST possède 3 modèles d'émission secondaire électronique :

- Furman ;
- Vaughan ;
- Import d'un fichier de courbe SEY (*Secondary Emission Yield*).

Le modèle de Furman repose sur un modèle probabiliste, mathématiquement auto-cohérent qui, comparé aux autres modèles, différencie les trois types d'électrons secondaires. Par conséquent, il est le plus sophistiqué mais de nombreux paramètres doivent être définis pour configurer correctement le modèle d'émission. Dans de nombreux cas, le modèle d'émission Vaughan ou Import est suffisant. Nous avons fait le choix d'utiliser l'importation de fichier car nous n'avions pas assez d'informations sur nos matériaux (Acier inoxydable et molybdène) pour utiliser les modèles de Furman ou Vaughan.

Les données utilisées ont été tirées du rapport écrit en 2005 par Y.Lin de l'Université du Tennessee. Cet article contient le rendement d'électrons secondaires pour 44 éléments trouvés à partir de lois semi empiriques et avec un modèle de simulation Monte-Carlo. Le calcul du rendement se déduit de la « courbe universelle » qui est :

$$\delta = 1,28 \left( \frac{E_{PE}}{E_{PE}^m} \right)^{-0,67} \left( 1 - \exp \left( -1,614 \left( \frac{E_{PE}}{E_{PE}^m} \right)^{1,67} \right) \right) \delta^m \quad (V-12)$$

Avec :  $\delta^m$  le rendement maximum ;

$E_{PE}^m$  énergie primaire associée au rendement ;

$E_{PE}$  l'énergie primaire du faisceau.

Pour adapter les paramètres du modèle aux différents types d'électrons secondaires, une interface de programmation a été implémentée. Cette interface permet de spécifier le nombre d'électrons secondaires qu'un électron primaire est capable de générer. Il est également possible de définir le nombre maximal de générations d'électrons secondaires et de modifier les paramètres des matériaux par défaut. Notre modèle probabiliste est donc conçu pour être basé sur le matériau, et prend en compte l'énergie et l'angle des interactions. Il est essentiel de garantir que le modèle respecte les principes fondamentaux de conservation, par exemple, l'énergie des électrons émis ne doit jamais excéder celle de l'électron primaire.

### V.B.2.3 Libre parcours moyen et section efficace

Concernant le libre parcours moyen et les sections efficaces, ces derniers sont directement pris en compte dans CST via un modèle de Collision Monte Carlo (MCC). En général, une simulation ne peut contenir qu'une seule collision MCC par type de collision et par type de particule. CST prend en compte :

- L'ionisation par impact électronique
- La diffusion élastique par électron
- L'excitation par électron
- La diffusion élastique par ions
- L'ionisation par impact

Pour simuler correctement les interactions, il est essentiel d'introduire d'abord un gaz neutre en arrière-plan. Ce gaz occupe l'ensemble de l'espace disponible et ses caractéristiques telles que la densité, la pression et la température sont constantes, tant dans l'espace que dans le temps. Ces trois paramètres ne sont pas influencés par les collisions qui peuvent survenir.

Il est supposé que la fréquence des collisions entre les particules du gaz neutre soit beaucoup plus élevée que celle entre les particules chargées simulées et le gaz de fond neutre. Ainsi, le gaz de fond reste dans son état d'équilibre. Le modèle perd sa validité si les collisions ont un effet notable sur le gaz de fond, par exemple, dans le cas d'un plasma très fortement ionisé.

### V.B.2.3.1 Probabilité d'interaction

La probabilité d'interaction dépend de la densité du gaz, de la section efficace de collision et de la vitesse relative entre la particule incidente et la particule cible.

La section efficace de collision dépend de l'énergie des particules en collision. Si la particule incidente est un électron, on suppose que cet électron est beaucoup plus rapide que l'atome neutre. Par conséquent, la contribution de la vitesse et de l'énergie du neutre est négligée. Si la particule incidente est un ion, la vitesse de la particule neutre est prise en compte.

La dépendance énergétique de la section efficace peut être choisie librement en important les données de section efficace correspondantes.

CST y intègre plusieurs hypothèses :

- Les collisions se produisent indépendamment.
- Les collisions se produisent à un taux constant, qui est donné par la fréquence de collision.
- Deux collisions ne peuvent pas se produire exactement au même instant. Puisque le pas de temps du solveur est fini, un nombre arbitraire de collisions peut survenir dans un seul pas de temps du solveur.
- La probabilité d'une collision dans un intervalle de temps est proportionnelle à la longueur de l'intervalle.

La probabilité  $P$  de collision est donc donnée par l'équation suivante :

$$\rho_D = \frac{p}{k_B T}$$

$$l_{pm} = \frac{1}{\rho_D \sigma} \tag{V-13}$$

$$P(e^- \rightarrow \text{ionisation}) = 1 - \exp\left(-\frac{L}{l_{pm}}\right)$$

Avec :  $p$  et  $T$  la pression et la température ;

$\rho_D$  la densité ;

$l_{pm}$  le libre parcours moyen ;

$\sigma$  la section efficace ;

$L$  la longueur du trajet.

### V.B.2.3.2 Section efficace d'ionisation

Via CST, nous pouvons intégrer directement les courbes de section efficace. Nous avons extrait des données du NIST (NIST, 2021) présentée dans la Figure V-6.

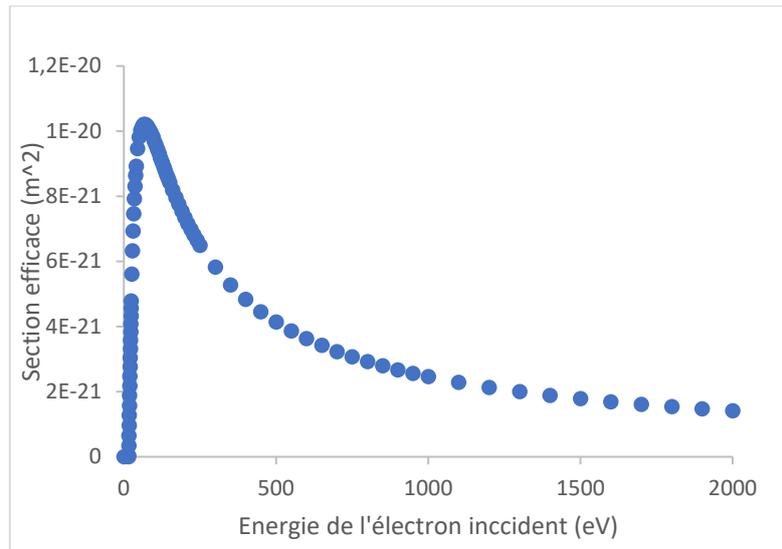


Figure V-6 : Section efficace de la réaction  $e^- + H_2 \rightarrow H_2^+ + 2 e^-$  intégré sur CST-

## C. DESCRIPTION DE LA SIMULATION

### V.C.1 GÉOMÉTRIE GLOBALE

Pour le choix de la géométrie de notre dispositif, nous avons cherché à nous rapprocher autant que possible du modèle de source d'ions actuel de Sodern, tout en conservant au maximum ses caractéristiques. Cette décision est justifiée par plusieurs facteurs : l'approvisionnement en matériaux, les connaissances internes accumulées chez Sodern concernant ces matériaux, ainsi que les aspects pratiques de mise en place. De manière plus concrète, notre configuration se compose de différents éléments illustrés dans la figure 3, disposés de gauche à droite :

- Un isolant permettant le passage des broches métalliques ;
- La cathode 1 située au fond de la source ;
- L'anode cylindrique centrale en inox ;
- L'ensemble est entouré par l'aimant, lui-même encerclé par une cage étanche en Inox 316L conçue pour éviter toute émission de gaz dans la source ;
- La seconde cathode, qui permet l'extraction des ions.

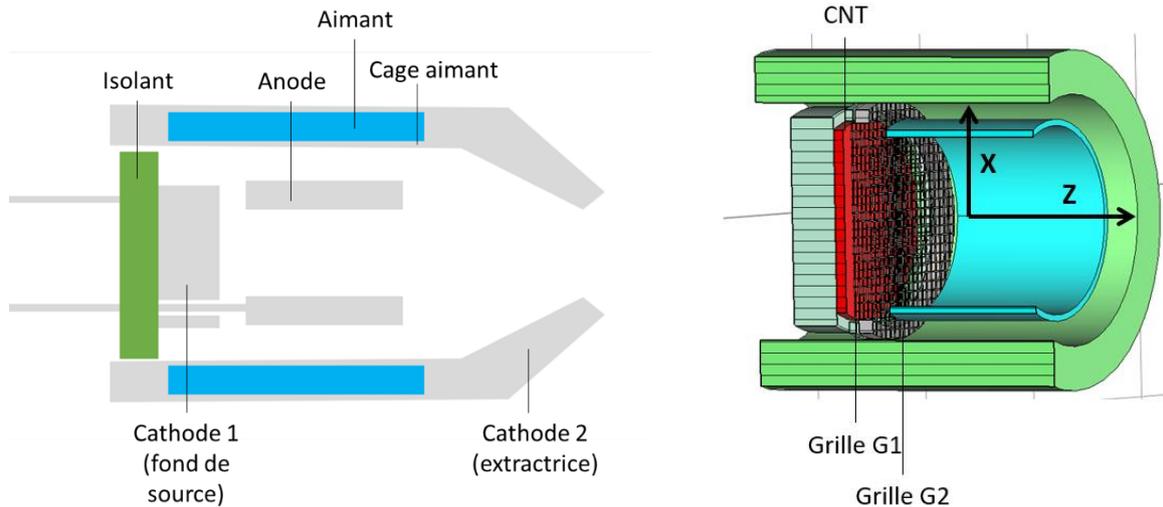


Figure V-7 : Schéma de la source d'ions actuelle et de la source

Au niveau des potentiels actuels, la cathode 1, la cathode 2 et la cage de l'aimant sont connectées à la masse, avec uniquement l'anode centrale polarisée avec une tension de l'ordre du kilovolt.

Les simulations ont révélé que les électrons précurseurs sont principalement émis depuis la cathode 1, et plus particulièrement au niveau le passage des broches qui la traversent. Ces points d'émission très spécifiques nécessitent une attention particulière pour optimiser l'extraction et la gestion des électrons dans le dispositif. Nous avons donc choisi de placer les CNT au niveau de cette cathode en regard de l'anode de façon à placer les électrons au centre de la source de Penning.

Par la suite nous allons nous concentrer sur les conditions de simulations intrinsèques à CST.

## V.C.2 CONDITIONS

### V.C.2.1 Maillage

CST intègre deux types de maillage : le maillage tétraédrique et le maillage hexaédrique. Le maillage hexaédrique est le plus adapté pour des géométries relativement planes et c'est avec ce type de maillage que les ressources de CST sont les mieux utilisées.

La gamme de fréquences et les diélectriques sont pris en compte par le système mais certaines propriétés de maillage pour des formes individuelles peuvent également être définies manuellement. Pour nos simulations, nous avons augmenté le maillage entre la cathode et les grilles de façon à voir si CST modélisait exactement les potentiels aux niveaux des grilles.

Il faut trouver un bon compromis entre la densité du maillage (affectant le temps de simulation) et la précision. Nos simulations comprennent entre 1,1 à 6,9 millions de mailles.

### V.C.2.2 Matériaux

CST Studio Suite intègre une bibliothèque de matériaux. Cette bibliothèque catégorise les matériaux en plusieurs types dont trois principaux que nous utilisons :

- PEC (*Perfect Electrically Conducting material*) pour les conducteurs parfaits sans résistance électrique
- Normaux décrivant des matériaux dotés de propriétés électromagnétiques définies

Ils sont définis par leur perméabilité relation électrique  $\epsilon_r$  et magnétique  $\mu_r$  :

$$\epsilon_r = \frac{\epsilon}{\epsilon_0} \qquad \mu_r = \frac{\mu}{\mu_0} \qquad (V-14)$$

Avec :  $\epsilon$  et  $\mu$  perméabilité électrique et magnétique du matériau

$\epsilon_0$  perméabilité électrique du vide de  $4\pi \times 10^{-7} \text{ kg m A}^{-2} \text{ s}^{-2}$

$\mu_0$  perméabilité magnétique du vide de  $1,25 \times 10^{-6} \text{ kg m A}^{-2} \text{ s}^{-2}$

Bien que CST permette d'appliquer des propriétés thermiques et mécaniques, telles que la conductivité thermique et la densité, ces paramètres ne seront pas utilisés dans le cadre actuel. Tous les matériaux spécifiés auront une conductivité thermique de 0 W/K/m et une densité spécifiée de zéro.

Dans notre source d'ions, nous utilisons principalement de l'inox 316L, de l'isolant et du vide. Ces trois matériaux sont simulés avec les paramètres retranscrits dans le Tableau V-1.

MATÉRIAUX	GROUPE	EPSILON	MU	DENSITÉ (KG.M <sup>3</sup> )	MÉCANIQUE
INOX 316L	PEC	/	1	0	/
ISOLANT	Normal	9.4	1	3800	Module de Young 300 Gpa ratio Poisson 0,22
VIDE	Normal	1	1	0	Module de Young 0 Gpa

TABLEAU V-1 : PARAMÈTRES DES MATÉRIAUX INTÉGRÉS À NOTER SIMULATION

### V.C.2.3 Simulation du Gaz

Nous avons la possibilité d'ajouter un gaz, qui sera placé dans l'ensemble de la simulation à toute espace vide. La définition du gaz de fond nécessaire pour les collisions avec les particules simulées se fait via une table spécifique :

NOM	MASSE (U)	PRESSION (TORR)	TEMPÉRATURE (K)	DENSITÉ (1/M <sup>3</sup> )
H <sub>2</sub>	4	Variable	290	$3,33 \times 10^{13}$

TABLEAU V-2 : PARAMÈTRES DU GAZ

La densité du gaz avec la pression permet de calculer la fréquence de collision. Cette dernière est définie dans un second tableau qui comprend le type de particule incidente, la cible (ici le gaz), le type de collision, le modèle de diffusion, et un paramètre spécifique représentant l'étalement énergétique des électrons. D'après les données des sections efficaces ( $\sigma_e$ ) associées aux réactions de collisions présentées dans le chapitre 2, nous observons que l'ionisation de H<sub>2</sub> est la réaction la plus probable. Par analogie, nous pouvons supposer qu'il en est de même pour le deutérium et le tritium car il s'agit d'une réaction atomique et non nucléaire. Nous avons donc choisi d'intégrer uniquement cette réaction dans nos simulations, en utilisant un modèle de diffusion Coulombien qui suppose une

diffusion anisotrope dépendante de l'énergie. La courbe de section efficace est directement importée des données du NIST.

#### V.C.2.4 Conditions aux limites

Plusieurs types de conditions aux limites sont disponibles et peuvent être appliqués à n'importe quelle face de la boîte. Concernant notre simulation, nous avons choisi des conditions aux limites magnétiques où tous les champs magnétiques tangentiels et les flux électriques normaux sont mis à zéro. C'est-à-dire que cela fonctionne comme un conducteur magnétique parfait : tous les champs magnétiques tangentiels et les flux électriques normaux sont réglés à zéro. Cela signifie que les champs électriques sont parallèles à la limite et que les flux magnétiques sont normaux à cette limite.

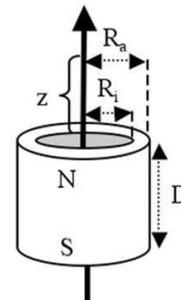
CST offre également la possibilité d'utiliser une symétrie de plan et d'appliquer des potentiels aux limites. Cependant, nous n'utilisons aucun de ces deux réglages dans notre configuration.

#### V.C.3 *SIMULATION DE L'AIMANT PERMANENT*

L'aimant, un cylindre creux orienté selon l'axe Z, doit subir quelques modifications pour être correctement simulé par CST. Pour définir un aimant permanent il est nécessaire de sélectionner la face d'un solide non-PEC, nous le simulons par du vide. Un système de coordonnées locales (SCS) est ensuite associé à ce solide, qui sera transformé en même temps que le solide. La densité de flux de rémanence  $B_r$  doit être spécifiée cependant nous ne connaissons sur notre source d'ions actuelle que le champ sur l'axe B. La relation entre le champ magnétique axial B et  $B_r$  est donnée par l'équation :

$$B = \frac{B_r}{2} \left[ \frac{D+z}{\sqrt{R_a^2 + (D+z)^2}} - \frac{z}{\sqrt{R_a^2 + z^2}} - \left( \frac{D+z}{\sqrt{R_i^2 + (D+z)^2}} - \frac{z}{\sqrt{R_i^2 + z^2}} \right) \right] \quad (V-15)$$

- Avec : D longueur de l'aimant selon l'axe (m);  
 z la distance à la face du cylindre sur l'axe du tube (m);  
 $R_a$  le rayon extérieur du cylindre (m);  
 $R_i$  le rayon intérieur du cylindre (m);



Nous retrouvons via CST cette corrélation, que nous illustrons avec l'exemple présent sur Figure V-8, d'une valeur de  $B_r$  de 1,75 T et un champ sur l'axe Z de 0,18 T. On retrouve une perturbation du champ à 8,24 mm ce qui correspond au positionnement de la grille G2. On peut voir plus en précision cette perturbation en comparant les champs radiaux à 8,24 mm (au niveau de la grille) et à 12 mm sur la figure.

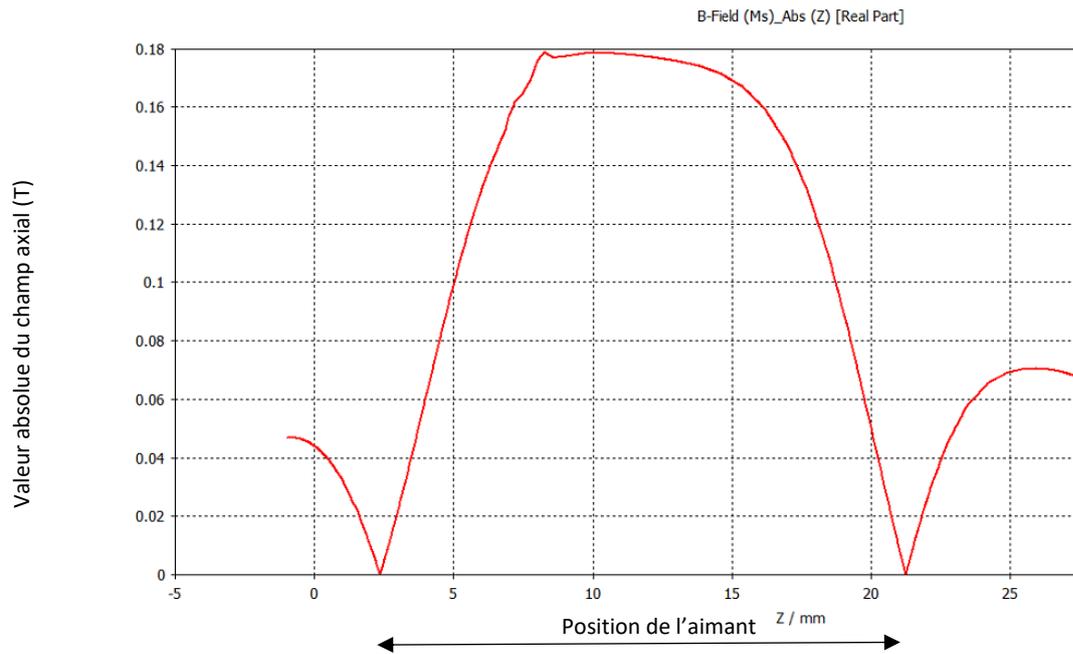


Figure V-8 : Champ magnétique axial pour un champ rémanent de 1,75 T

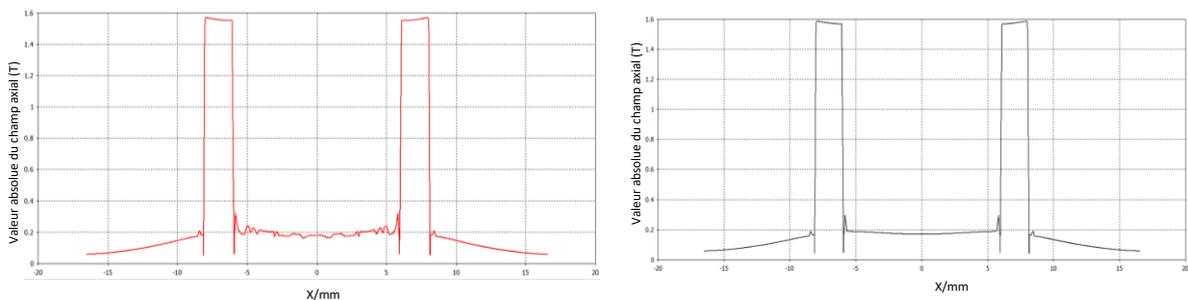


Figure V-9 : Champ magnétique selon X pour un champ rémanent de 1,75 T à Z= 8,24 mm (gauche) et Z= 12 mm (droite)

## D. SOURCE D'ÉMISSION ÉLECTRONIQUE DES CNT

### V.D.1 CHOIX GÉOMÉTRIQUE

Pour optimiser l'extraction des électrons des CNT, nous avons initialement envisagé de positionner les CNT directement face à l'anode. Cependant, cette configuration n'aurait pas permis une émission uniforme au centre ; comme le montre la Figure V-10 représentant la densité de courant à 1 mm de la source ; mais plutôt une émission plus intense sur la périphérie, due aux différentiels de potentiels plus élevés à proximité de l'anode. De plus, pour garder une source de Penning, les CNT auraient été à la masse, rendant leur émission tributaire de la tension appliquée à l'anode.

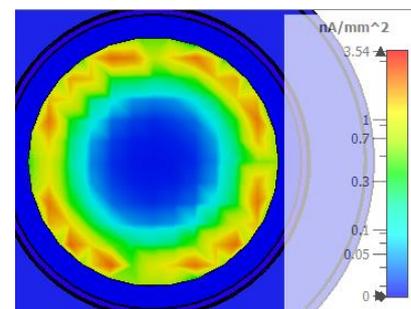


Figure V-10 : Densité de courant à 1 mm des CNT pour une source sans grille dans le plan XY

Nos premières simulations se sont donc orientées vers une géométrie de source d'électrons comprenant le substrat sur lequel étaient déposés les CNT, face à une grille simple. Nous pouvons

ainsi extraire les électrons en appliquant une tension unique aux CNT, avec une grille à la masse. Cette géométrie, cependant, a présenté deux problèmes majeurs :

- L'énergie des électrons dépendant de la tension appliquée au CNT : on ne pourra pas faire varier l'énergie des électrons sans avoir d'impact sur la quantité d'électron émis. Ils auront donc une énergie allant de 500 à 1000 eV. Cette haute énergie devait être compensée par un champ magnétique puissant pour encourager les allers-retours des électrons dans la source d'ions.
- Apparition de bulles de potentiel dans l'espace d'ionisation : Des perturbations des champs électriques étaient observables au niveau de la grille, affectant le parcours des électrons ainsi que l'extraction.

Nous avons donc opté pour une nouvelle configuration impliquant deux grilles, G1 et G2, avec trois potentiels différents illustrés par la Figure V-11. L'avantage principal de cette architecture est que nous pouvons moduler l'énergie des électrons en ajustant la tension sur la grille G1. Cette approche permet une gestion plus précise de l'énergie des électrons, réduisant potentiellement les problèmes liés aux champs électriques perturbés et améliorant l'efficacité de l'ionisation.

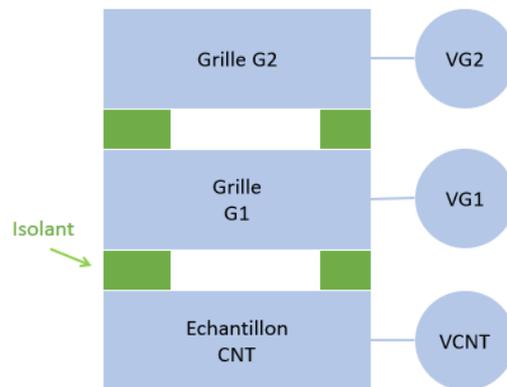


Figure V-11 : Schéma théorique de la source d'électrons

En se basant sur l'architecture actuelle de notre source et sur les conclusions du chapitre 3, nous avons déterminé les distances optimales entre chaque élément de notre configuration.

Pour la distance entre les CNT et la grille G1, il a été constaté une distance de saturation à 1,1 mm et une distance minimale efficace de 250  $\mu\text{m}$ . Nous avons donc opté pour une distance intermédiaire de 500  $\mu\text{m}$ . Ce choix permet d'intégrer des CNT de différentes tailles tout en maintenant une distance suffisamment faible pour appliquer des tensions inférieures au kilovolt, optimisant ainsi l'efficacité de l'extraction des électrons tout en minimisant les risques de décharge électrique.

Pour la distance entre G1 et G2, nous avons choisi de nous positionner à 1 mm. Cette distance a été choisie afin d'obtenir, dans la mesure du possible, des lignes de potentiel parallèles entre elles, tout en minimisant la formation de bulles de potentiel au sein de la partie ionisation.

Pour la suite, nous allons concentrer sur la simulation des différents éléments : l'émission électronique des nanotubes de carbone et les grilles.

## V.D.2 PARAMÈTRES DE MODÉLISATION

### V.D.2.1 Modélisation des CNT

Dans CST Studio, il est techniquement faisable de simuler des nanotubes de carbone (CNT) individuellement à l'échelle nanométrique, ce qui permet d'analyser en détail l'impact des potentiels

appliqués sur ce matériau. Cependant, intégrer des éléments nanométriques dans des simulations à l'échelle centimétrique s'avère extrêmement gourmand en temps de calcul, ce qui rend cette méthode peu viable pour nos recherches. En conséquence, nous avons adopté une approche plus simplifiée en représentant le tapis de nanotubes comme une surface plane. Sur cette surface, nous appliquons un modèle d'émission électronique basé sur la courbe de Fowler-Nordheim, déjà intégrée dans CST, comme détaillé dans la section Source d'électron.

Pour ajuster les valeurs des paramètres a et b de notre modèle, nous nous repons sur les données expérimentales collectées pour quatre échantillons (numérotés jusqu'à 5) qui affichent des caractéristiques d'émission similaires. Chacun de ces échantillons présente un champ d'activation inférieur à 450 V/mm à une distance de 1,1 mm et montre une capacité d'émission constante dans le temps sous des champs électriques comparables. Nous avons reproduit exactement le même positionnement que celui décrit dans le chapitre III. Source d'électrons et les expériences menées sur les CNT que nous retrouvons un exemple dans la Figure V-12.

Suite au problématique de dispersion mise en avant dans les travaux de Valentin Steichen, nous ajoutons une dispersion angulaire, présenté dans la section Paramètres cinétiques de 10°.

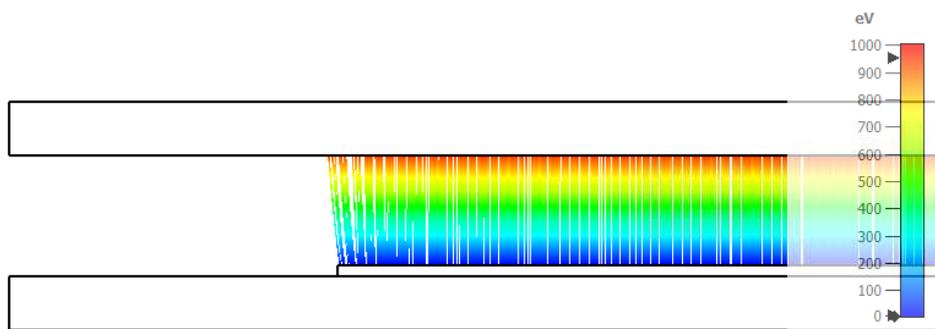


Figure V-12 : Simulation des CNT et de la trajectoire des électrons dans une configuration plan-plan

La valeur du paramètre a est déterminée à l'aide de la relation suivante :

$$\ln\left(\frac{1}{V^2}\right) = \frac{1000}{V} \quad (V-16)$$

Cette équation nous permet de calibrer le modèle d'émission pour qu'il reflète fidèlement les performances observées lors des tests en laboratoire.

Nous traçons sa courbe de tendance linéaire sous la forme :  $y = A + Bx$

Nous retrouvons alors a :  $-A/1000 = \ln(a)$

Par application numérique, nous obtenons les paramètres suivant pour une cathode de  $10 \times 10 \text{ mm}^2$  :

$$\begin{aligned} \dot{A} &= 4 \text{ E} - 14 \\ B &= 1.9 \text{ E} + 06 \end{aligned} \quad (V-17)$$

Ce qui nous permet d'obtenir ensuite par simulation la Figure V-13. Au cours de nos simulations, la source d'électrons comprend 100 000 points d'émission, résultant d'un ajustement au maillage.

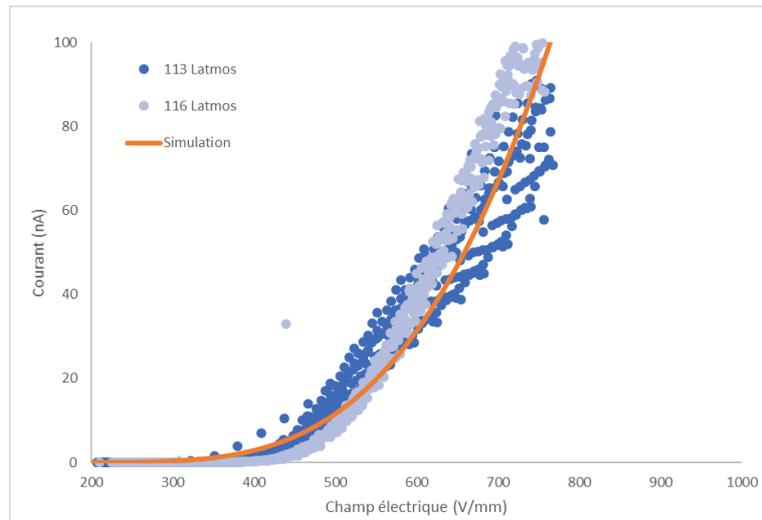


Figure V-13 : Courbe I-E comparant les valeurs de simulations aux expériences

### V.D.2.2 Modélisation des grilles

Les premières simulations ont été réalisées à partir de grilles très simplifiées, soit en forme de spirales soit simplement constituées d'une surface plane polarisée à forte transparence. Cependant, ces simulations n'ont pas pris en compte deux réalités importantes :

- La modification des trajectoires des électrons par les grilles.
- Une différence entre la transparence optique et électrique.

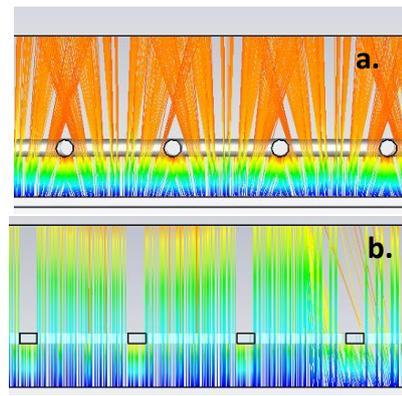


Figure V-14 : Simulation des grilles avec une section ronde (a) ou carré (b)

On retrouve ces deux caractéristiques lors de nos simulations avec de vrais barreaux comme le montre la Figure V-14 qui compare des simulations avec des barreaux carrés et des barreaux ronds. Nous avons fait le choix d'utiliser une section carrée, moins coûteuse en termes de maillage.

Les grilles utilisées comme référence sont des grilles commerciales en molybdène, renforcées avec un alliage de cuivre. Elles ont été choisies pour leur robustesse et leur planéité, tout en ayant une transparence élevée. Les caractéristiques de ces grilles sont présentées dans la figure suivante :

## V. Optimisation par simulation numérique d'une source d'ions intégrant des CNT

Épaisseur de la grille	0,0508 mm
Largeur de ligne	0,0508 mm
Espacement entre les lignes	0,381 mm
Transparence	75 %

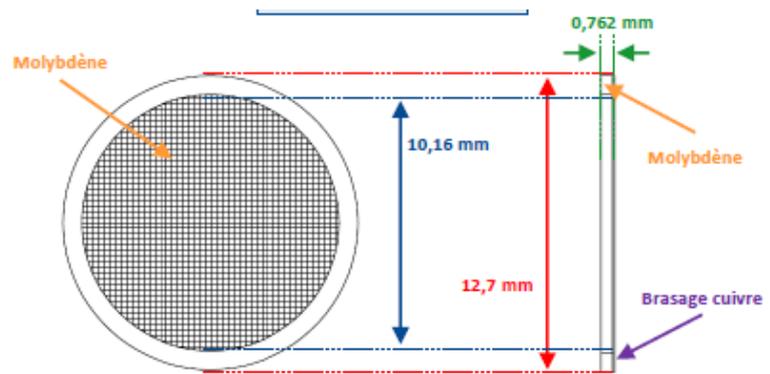


Figure V-15 : Tableau et schéma récapitulatif de la géométrie des grilles

Les simulations ont révélé une divergence intéressante entre la transparence optique et électronique des grilles utilisées. Alors que la transparence optique est évaluée entre 75% à 80%, la transparence électronique totale, quant à elle, n'atteint que 60%. On retrouve sur la Figure V-16, un exemple de la transparence électriques au niveau de la grille.

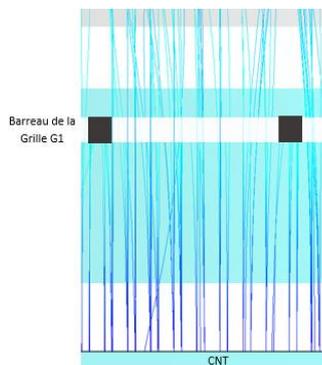


Figure V-16 : Visualisation de la grille par les électrons émis par les CNT

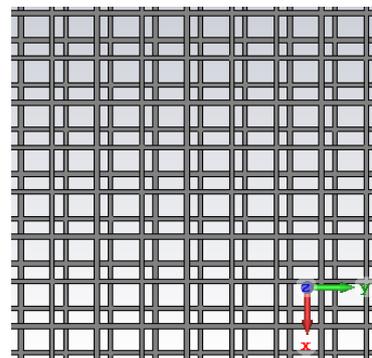


Figure V-17 : Décalage entre les deux grilles

Enfin, pour approcher un scénario plus réaliste et complexe, les deux grilles ont été délibérément décalées l'une par rapport à l'autre comme le montre la Figure V-17.

### V.D.3 CHOIX DU SOLVEUR ET GRANDEURS OBSERVÉS

Dans le cadre de notre étude paramétrique initiale, nous avons employé le solveur de type "Tracking", suivi par l'utilisation du solveur ES-PIC lors de la validation des données.

La détermination directe du temps de vol ou de la distance parcourue par les électrons étant complexe, nous avons opté pour une grandeur observable principale : le nombre de particules restant dans l'espace d'ionisation après un temps  $t$  fixé, sans avoir été capté par une des électrodes du système.

Il est possible de quantifier aisément le nombre de particules émises pour chaque élément via CST. De même, nous pouvons extraire le nombre de particules interagissant avec les éléments de la simulation soit : les grilles, la cage interne de l'aimant, l'anode, et à terme la cible. L'un des avantages de cette mesure est sa facilité d'extraction, qui ne nécessite aucune visualisation complexe. Pour définir le temps de simulation, appelé "timestep", nous nous sommes appuyés sur une simulation de référence

et avons observé l'évolution dans le temps du pourcentage de particules interagissant. Cette analyse nous a permis d'obtenir la Figure V-18.

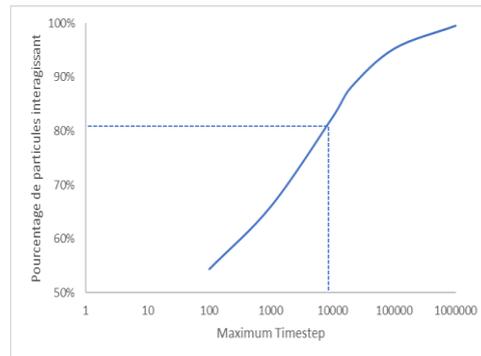


Figure V-18 : Pourcentage de particules interagissant en fonction du temps de simulation

Nous avons donc délibérément choisi de nous positionner aux alentours de 80% (soit 78 %) des particules interagissant, ce qui correspond à un timestep de 10 000, équivalant à un temps de simulation de 9,141725 nanosecondes. Le terme temps de simulation maximum ou maximum timestep est utilisé car la simulation se termine automatiquement lorsque ne reste plus aucune particule en vol. Cela assure que la simulation ne se prolonge pas au-delà de l'interaction de toutes les particules, optimisant ainsi le temps de calcul sans compromettre la précision des résultats obtenus.

## E. RÉSULTATS DES SIMULATIONS

En intégrant la source d'électrons dans notre géométrie, nous avons voulu comprendre le placement de l'anode par rapport à l'aimant ainsi que les valeurs de champs magnétiques et électriques qui y sont associés.

### V.E.1 GÉOMÉTRIE

Nous avons décidé de conserver la taille de l'anode et de l'aimant déjà en notre possession. Nous nous sommes d'abord concentrés sur l'optimisation de la géométrie de façon à comprendre l'arrangement spatial de chaque élément par rapport à l'aimant, incluant le placement de la source d'électrons et de l'anode. Pour rappel, nous obtenons la géométrie présente dans la Figure V-19.

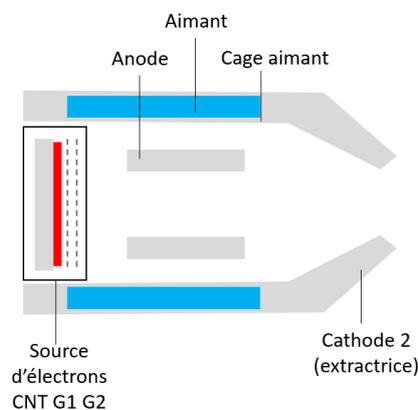


Figure V-19 : Schéma de la source d'ions avant l'optimisation du positionnement des éléments

### V.E.1.1 Placement de la source d'électron

Pour le positionnement de la source d'électrons, c'est-à-dire les CNT avec les deux grilles, plusieurs configurations étaient envisageables :

- Positionner la source à l'extérieur de l'aimant.
- Maintenir la source à l'emplacement du fond de la source.
- Positionner la source entre ces deux positions.

Après plusieurs simulations, nous avons délibérément choisi de positionner la source d'électrons au même endroit que le fond de la source actuelle. Cette décision nous permet d'aligner l'arrivée des électrons dans l'espace d'ionisation avec le plateau du champ magnétique comme le montre la Figure V-20.

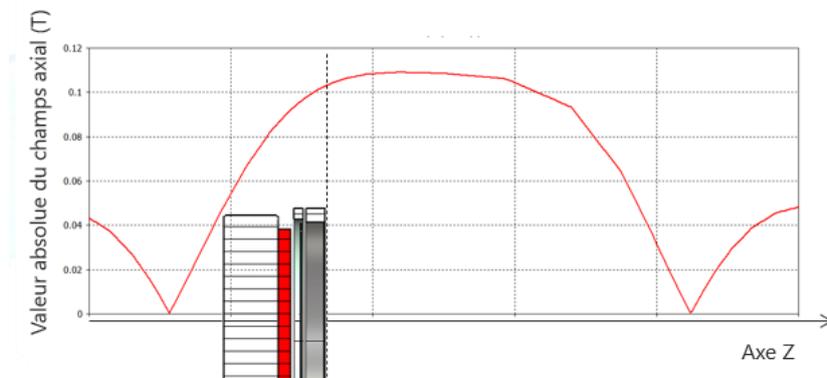


Figure V-20 : Alignement de la source d'électrons avec le plateau du champ magnétique

### V.E.1.2 Placement de l'anode

Pour comprendre le placement de l'anode, nous avons d'abord fixé les paramètres suivants :

- Une émission des CNT avec une différence de potentiel de 1000 V/m entre les CNT et la grille G1 ;
- Un placement de la source d'électrons tel que défini précédemment.

Nous avons varié trois paramètres afin d'explorer différentes configurations :

- L'intensité du champ magnétique de l'aimant de 0,5 à 1,75 T ;
- Le positionnement de l'anode de +/- 2 mm selon Z ;
- La tension appliquée à l'anode allant de 500 V à 1700 V.

Cela nous a permis de compiler les résultats dans le Tableau V-3 qui présente pour chaque valeur d'aimantation le meilleur résultat, c'est-à-dire le plus bas pourcentage de particules ayant interagi, ainsi que la valeur de la tension anodique associée.

Aimantation (T)	Positionnement de l'anode par rapport à la référence (mm)							
	-1		0		1		2	
0,5	82%	800 V	95%	500 V	90%	1000 V	95%	1700 V
0,75	75%	1700 V	93%	600 V	79%	1000 V	94%	1300 V
1	79%	1200 V	88%	1000 V	78%	1700 V	96%	1700 V
1,25	74%	1700 V	86%	1500 V	81%	1200 V	97%	1600 V
1,5	89%	1700 V	94%	1200 V	80%	1700 V	97%	1700 V
1,75	90%	1700 V	95%	1100 V	85%	1700 V	97%	1700 V

Tableau V-3 : Pourcentage de particules ayant interagi en fonction de l'aimantation, du positionnement de l'anode et de la tension à l'anode

Les meilleurs résultats, c'est-à-dire ceux avec le pourcentage le plus bas de particules ayant interagi, se manifestent lorsque l'anode est avancée de 1 mm en avant par rapport à son placement actuel, avec une valeur minimale de particules interagissant de 78 %. Ce positionnement permet d'aligner le centre de l'anode avec la fin du plateau du champ magnétique comme le montre la Figure V-21.

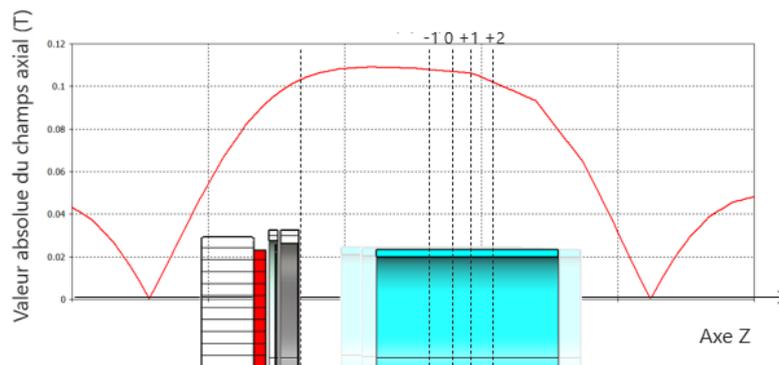


Figure V-21 : Alignement du centre de l'anode avec la fin du plateau du champ magnétique

## V.E.2 CHAMPS ÉLECTROMAGNÉTIQUES

Après avoir validé les positions de chaque élément de la source d'ions, nous nous concentrons désormais sur les paramètres des champs électromagnétiques couplés. Dans le contexte d'une source d'ions Penning, nous fixons l'ensemble de la cage à aimant à la masse. Cette configuration permet de varier le champ électrique uniquement via l'anode centrale. En ce sens, il est essentiel que la grille G2 de la source d'électrons soit maintenue à un potentiel de zéro afin de respecter la neutralité des parois de l'espace d'ionisation.

### V.E.2.1 Choix des tensions de la source d'électrons

Concernant la source d'électrons, le choix des tensions appliquées aux nanotubes et à la grille G1 est justifié par plusieurs arguments. Premièrement, il est nécessaire d'extraire les électrons avec un champ électrique de 1000 V/m, ce qui signifie que pour une distance de 500  $\mu\text{m}$ , les valeurs de tension varient de 0 à 500 V.

Plus précisément, des électrons à haute énergie requièrent des champs magnétiques plus forts pour être ralentis, ce qui implique également l'utilisation d'un champ électrique plus intense pour contrôler leur trajectoire.

On met en avant cette dynamique dans Figure V-22 où la source d'électrons ne comporte qu'une seule grille. Ainsi, la vitesse des électrons entrant dans l'espace d'ionisation correspond à celle acquise à la sortie de cette grille. Cette configuration simplifiée nous permet de tirer les valeurs des paramètres de champ magnétique et de tension anodique, en fonction de l'énergie d'entrée des électrons.

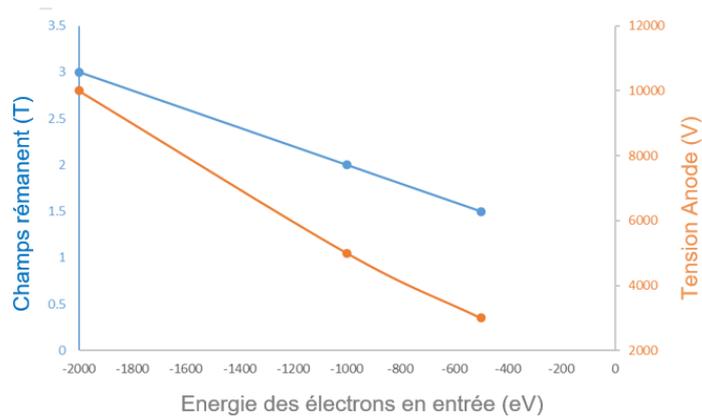


Figure V-22 : Corrélation entre les paramètres de champs électromagnétiques et l'énergie d'entrée des électrons dans l'espace d'ionisation

Il est donc recommandé d'avoir une énergie électronique la plus basse possible pour limiter la puissance électrique requise par notre source d'ions.

Le dernier argument validant le choix de nos tensions est que la section efficace d'ionisation du deutérium est maximale aux environs de 100 V. Nous avons donc choisi de placer les CNT à -100 V et la grille G1 à 400 V. Comme le montre la Figure V-23, les électrons sont d'abord accélérés par des lignes de champ de 100 V/mm jusqu'à la grille G1, où ils atteignent une énergie de 500 eV. Ils sont ensuite ralentis jusqu'à la sortie de la source d'électrons par G2, arrivant avec une énergie finale de 100 eV.

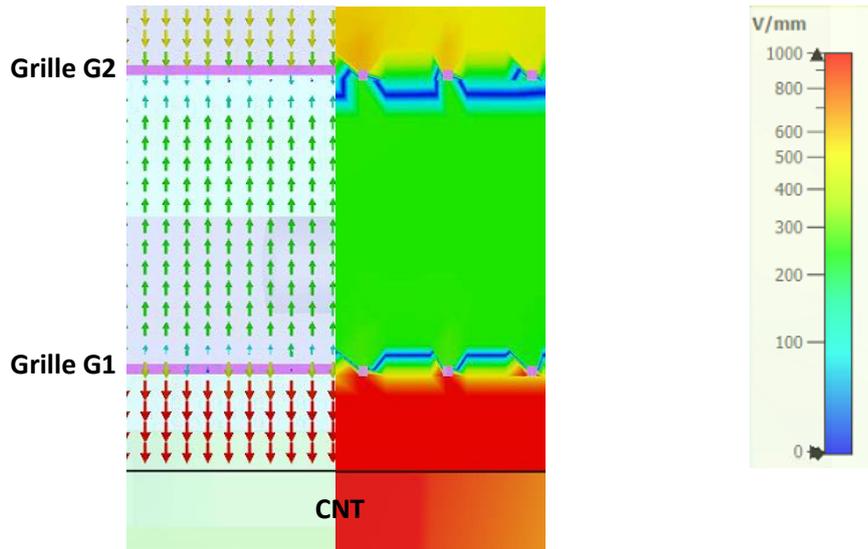


Figure V-23 : Visualisation des champs électriques

### V.E.3 RATIO TENSION AIMANTATION

Maintenant que plusieurs paramètres clés ont été fixés, nous pouvons déterminer les combinaisons optimales de tension de l'anode et de champ magnétique de l'aimant. Cette analyse nous a permis d'obtenir la Figure 2, où deux pics distincts se détachent à 79 % et 78 % de particules n'ayant pas interagi.

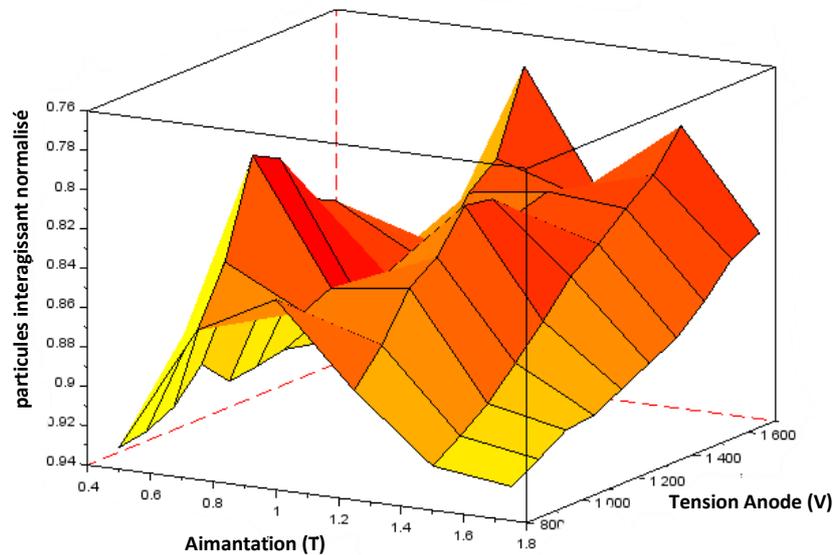


Figure V-24 : Cartographie du pourcentage de particules interagissant en fonction de l'aimantation et de la tension à l'anode

Comme discuté dans la section Paramètres de modélisation, nous avons initialement visé un taux de 78 % de particules restantes. Toutefois, il est important de noter que ces particules n'ont pas été

émises par le fond de la source mais par les CNT. Ainsi, nous identifions deux configurations potentielles qui offrent des résultats :

Point	N°1	N°2
Tension Anode	1000 V	1700 V
Aimantation	0,75 T	1 T
Pourcentage d'interaction	79%	78 %

Tableau V-4 : Comparaison des deux points de simulations

En comparant les deux points, nous observons que le Point 2 requiert un champ magnétique plus élevé (1 T) et une tension sur la cathode significativement plus haute (1700 V) par rapport au Point 1. Cette augmentation de tension à la cathode indique une consommation de puissance plus importante, ce qui peut être un inconvénient en termes d'efficacité énergétique et de coût opérationnel.

Pour ces raisons, nous privilégions le Point 1 comme configuration optimale, à 0,75 T pour le champ magnétique de l'aimant et une tension de 1000 V sur la cathode.

### V.E.3.1 Effet du champ magnétique sur les interactions

Si l'on regarde de plus près les effets variés du champ magnétique sur les interactions des électrons, on obtient des courbes qui suivent toujours la même tendance. Ces différentes courbes, présentes sur la Figure V-25 ont été obtenues avec des électrons en entrée à différentes énergies.

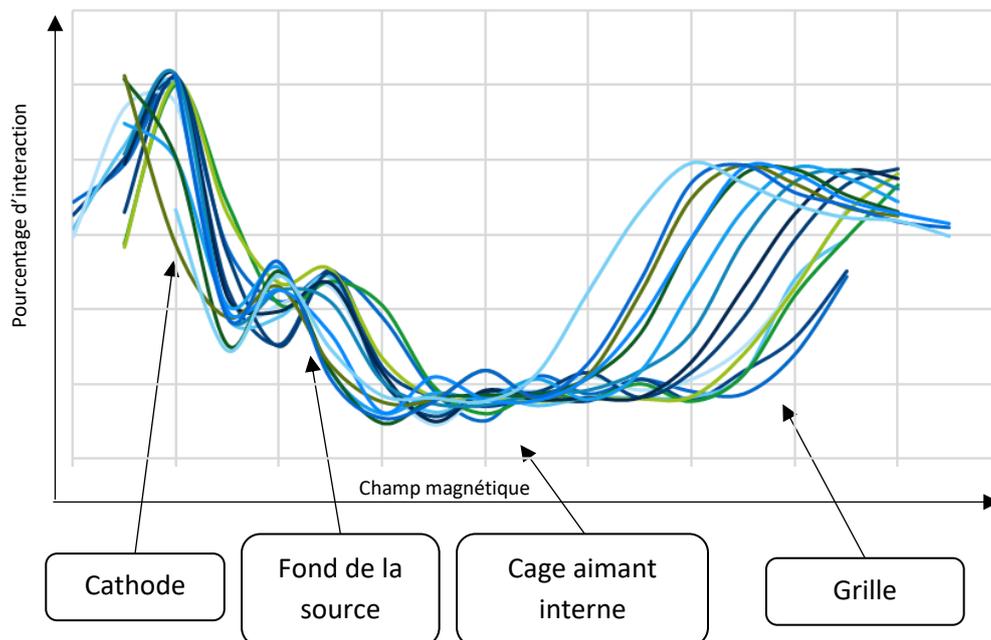


Figure V-25 : Cartographie du pourcentage de particules interagissant en fonction de l'aimantation et de la tension à l'anode

Examinons cela plus en détail :

- Premier pic d'interaction : Il se produit quand toutes les particules interagissent avec l'anode centrale, ce qui indique que la tension de cette dernière est trop élevée et n'est pas compensé par le champ magnétique.
- Second pic d'interaction : Ce pic survient lorsque le champ magnétique est suffisamment fort pour empêcher les électrons de se précipiter vers l'anode, mais pas assez pour les faire revenir en arrière. Cela suggère une amélioration du confinement des électrons, mais il y a toujours un taux d'interaction notable.
- Plateau : Lorsque nous atteignons ce plateau, qui correspond à notre espace d'interaction minimum, les électrons finissent par interagir avec les bords de l'espace d'ionisation, soit la cage interne de l'aimant.
- Dernier effet à forte aimantation : Lorsque le champ magnétique devient trop fort par rapport à l'anode, les électrons sont repoussés vers les grilles G1 et G2.

Cette répétition dans la forme de la courbe reflète la relation non linéaire et complexe entre l'intensité du champ magnétique et les interactions électroniques au sein de l'espace d'ionisation.

### V.E.3.2 Parcours des électrons

L'utilisation de CST pour visualiser le parcours des électrons et la variation de leur énergie offre un aperçu précieux soit de la dynamique interne à la source d'ions. Pour la Figure V-26 , nous avons utilisé les conditions définies par le point n°1.

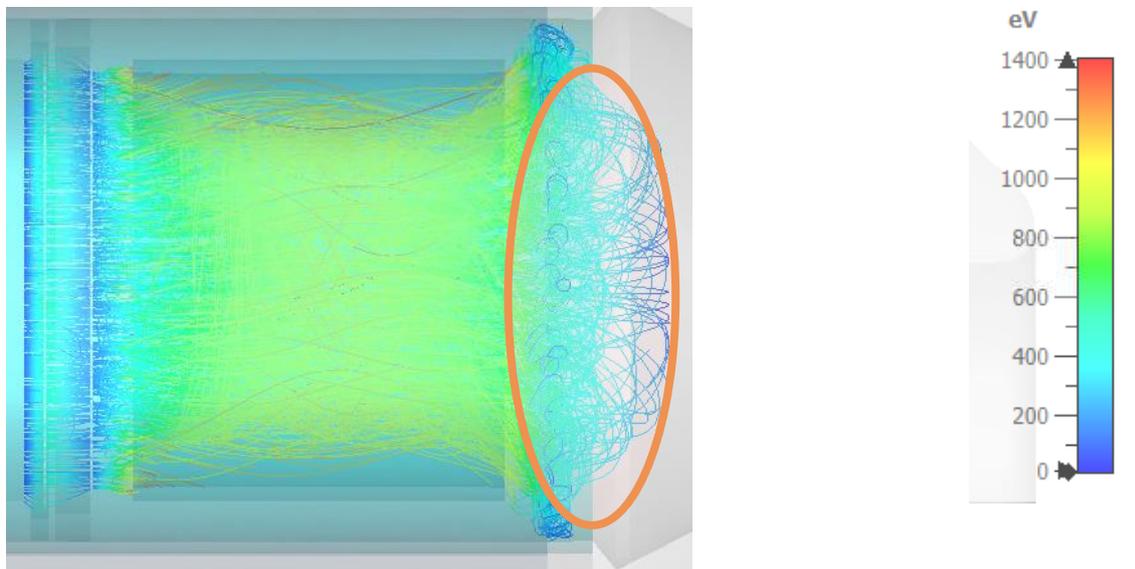


Figure V-26 : Trajectoires des électrons dans la source d'ions

On retrouve deux conclusions :

- les électrons suivent individuellement une trajectoire confinée, adoptant à la fois un mouvement hélicoïdal et des allers-retours dans la source.
- les électrons ont une énergie proche du maximum de section efficace d'ionisation lorsqu'ils sont dans l'espace d'extraction, ce qui augmente l'efficacité globale de la source d'ions.

### V.E.3.3 Simulation ES-PIC

Dans le but de valider notre modèle de simulation, nous sommes passés d'une approche de Tracking à une simulation ES-PIC. L'objectif était de confronter notre modèle de source d'ions améliorée à celui d'origine, en tenant compte de paramètres supplémentaires qui se rapprochent des conditions réelles.

Pour cela nous avons ajouté :

- L'activation des électrons secondaires par la grille G2 ;
- L'augmentation de la pression de  $1 \times 10^{-3}$  Torr.

Cela nous a permis d'obtenir, pour une quantité d'électrons identique, 2, 4 fois plus d'ions générés. Nous retrouverons cette simulation en Annexe 0.

### V.E.3.4 Conclusion

En conclusion, en ajoutant une source de CNT, nous avons réussi à obtenir via simulation :

- Un plus grand nombre d'électrons créés avec une énergie optimisée pour l'ionisation du gaz DT
- Plus d'ions créés et placés dans la zone d'extraction
- Une accélération de la création de plasma d'ions

Tout en réduisant la consommation électrique et le champ magnétique associé. Les données géométriques associées à ce modèle serviront à l'établissement de spécifications techniques internes à destination du bureau d'études mécaniques de Sodern en charge de la conception de la maquette. Celle-ci sera enfin testée, en utilisant les paramètres de pilotage optimaux (tension d'anode et des grilles) identifiés grâce à ces simulations. Le dernier chapitre de ce manuscrit présentera en détail le design de la maquette et les essais réalisés sur un nouveau banc de test.



## VI. ANALYSE DE LA SOURCE D'IONS CNT

---

Ce chapitre est consacré à la réalisation et aux tests de notre source d'ions équipée de nanotubes de carbone (SI CNT), suivant la phase de simulation du design. L'objectif est de surmonter certains défis associés aux sources d'ions traditionnelles, notamment en réduisant le temps de retard à l'amorçage et en augmentant la densité du courant ionique. Ainsi, ce chapitre documente le maquetage et l'évaluation de cette source d'ions à travers une série d'expérimentations et d'analyses.

La première section détaille la maquette de la Source d'Ions CNT, divisée en trois sous-parties exposant les données d'entrée et les contraintes qui définissent les paramètres fondamentaux et les limites opérationnelles. Dans la section suivante, nous présentons le dispositif expérimental utilisé pour évaluer la source : le banc d'essai EPSILON (Evaluation du Plasma des Source d'Ions Liées aux Objets Neutroniques). Pour terminer sur les essais réalisés sous différents régimes, c'est-à-dire, avec ou sans l'utilisation des CNT.

L'objectif principal de ce chapitre est de démontrer comment l'intégration des CNT peut améliorer la source d'ions, en discutant des stratégies possibles pour atteindre cet objectif. Cette exploration vise à fournir une compréhension des avantages et désavantages potentiels des CNT pour cette application.

### A. PRÉSENTATION DE LA MAQUETTE

Nous allons d'abord rappeler nos choix de géométrie, qui sont issus des simulations et des expériences réalisées sur les CNT, pour ensuite nous concentrer sur leur mise en œuvre pratique.

#### VI.A.1 DONNÉES D'ENTRÉES ET CONTRAINTES

Pour rappel, notre source d'ions appelé SI CNT se compose de trois sous-ensembles :

- Un Ensemble Source Électrons composé d'un substrat en Aluminium avec un dépôt de nanotubes de carbone et de deux grilles ;
- Un Ensemble Espace d'Ionisation comportant une anode cylindrique et un aimant permanent ;
- Un Ensemble Cathode Extractrice.

Ces éléments sont décrits en détail dans la suite du chapitre. À des fins de clarté, la Figure VI-1 ci-dessous montre un agencement simplifié de ces différents éléments, dont l'ensemble est placé dans une enceinte sous un gaz de faible pression.

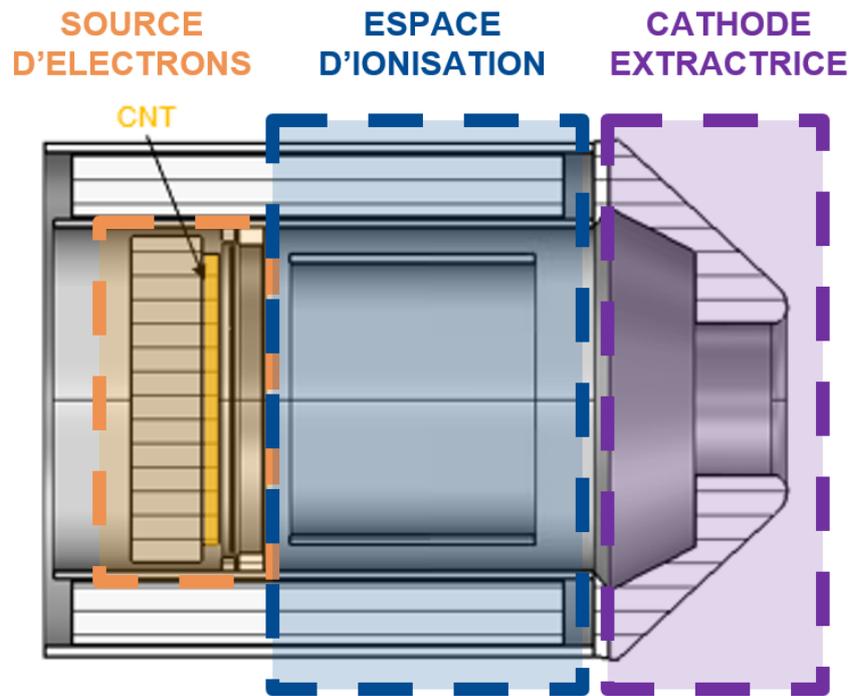


Figure VI-1: Architecture simplifié de la maquette SI CNT qui sera testée avec le banc EPSILON

### VI.A.2 LA SOURCE ÉLECTRONIQUE

Le principe consiste à placer les nanotubes dans un champ électrique compris entre 500 et 1 000 V/mm de façon à extraire des électrons. Cette différence de potentiel a lieu entre la grille d'extraction G1 et l'échantillon de CNT porté à une tension négative. Ce couple de tension  $V_{G1} - V_{CNT}$  détermine la quantité d'électrons entrant dans l'espace d'ionisation par la loi d'émission par effet de champ, le champ électrique étant proportionnel à la différence de potentiel.

Les électrons vont par la suite traverser une seconde grille, G2, portée à la masse électrique. Elle sépare électrostatiquement la partie émettrice de l'espace d'ionisation. La différence de potentiel  $V_{G2} - V_{G1}$  entre les grilles G1 et G2 permet de freiner les électrons initialement émis par les CNT et atteignant la grille G1 avec une énergie  $V_{G1} - V_{CNT}$  (en eV). L'énergie cinétique des électrons au niveau de la grille G2, dans le cas de  $V_{G2}$  égal à 0 V, est donc simplement égale à  $-V_{CNT}$ . Par exemple, pour  $V_{CNT}$  égal -100 V et  $V_{G2}$  égal +400 V, les électrons sont extraits sous 500 V de différence de potentiel et atteignent donc 500 eV au niveau de G1. Ils sont ensuite freinés par la différence de potentiel de -400 V entre les deux grilles, ils arrivent donc bien avec +100 V au niveau de l'espace d'ionisation. La transparence des grilles est d'environ 80%.

Nous avons donc trois éléments séparés les uns des autres par des entretoises isolantes, nous allons voir les caractéristiques physiques de ces éléments.

Concernant la géométrie, nous avons identifié les paramètres suivants :

Distance CNT – Grille G1	500 $\mu\text{m}$
Distance G1 – G2	1000 $\mu\text{m}$
Distance G2 – Anode	1000 $\mu\text{m}$

Tableau VI-1 : Paramètres géométriques de la source d'électrons

### VI.A.2.1 Substrat CNT

Les CNT sont déposés par la société *New Metals and Chemical Corporation* (Japon) sur une pastille en Aluminium de 13 mm de diamètre et 1 mm d'épaisseur. La hauteur des nanotubes varie pour chacun des 6 échantillons à notre disposition et n'excède pas 500  $\mu\text{m}$ . La croissance des nanotubes se fait sur l'une des faces du substrat, il est possible de retrouver des traces de nanotubes sur le flanc de la pastille inhérentes au processus de fabrication. Pour limiter les effets de bord, un cache isolant est posé, tel un masque, sur le substrat de façon à restreindre la zone d'émission.



Figure VI-2 : Échantillon de CNT

Ce cache est conçu pour être placé uniquement autour des bords tout en laissant un trou central exposé. Cette configuration vise à focaliser l'émission électronique des CNT au centre du disque, éliminant ainsi les effets de bord qui pourraient entraîner des émissions non contrôlées et non reproductibles. Le diamètre interne du cache est défini à 10 mm, aligné sur les dimensions de la grille d'extraction G1. Il pourrait être avantageux que le bord interne du disque soit biseauté pour réduire les interactions potentielles entre les électrons émis par les CNT et le cache.

Concernant les matériaux utilisés, le cache doit être composé d'un matériau isolant, afin d'éviter les perturbations du champ électrique. Ce cache peut donc être une seule et même pièce ou différentes pièces assemblées.

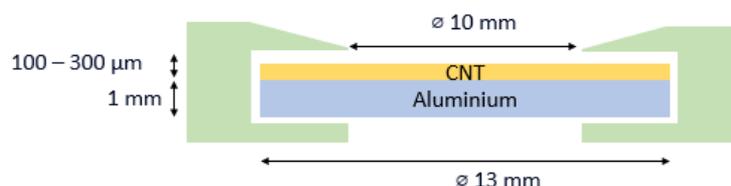


Figure VI-3: Configuration possible pour le sous-ensemble CNT équipé

### VI.A.2.2 Grilles d'extraction

Les grilles utilisées, que nous avons déjà à notre disposition, sont des grilles du commerce de la marque *HeatWave Labs* (USA). Ces grilles, présentent des transparences de 80% ou de 75%, selon le modèle choisi, avec un diamètre utile de 10 mm. Leurs caractéristiques sont détaillées dans la section dédiée aux grilles du chapitre 5. Elles sont fabriquées, par gravure chimique à partir d'un feuillet en molybdène

de 50  $\mu\text{m}$  d'épaisseur, un matériau choisi pour sa robustesse et sa capacité à maintenir une surface parfaitement plane.

### VI.A.3 ESPACE D'IONISATION

Arrivés dans l'espace d'ionisation, les électrons sont soumis à un champ croisé magnétostatique-électrostatique produit par l'aimant permanent extérieur et l'anode cylindrique centrale.

#### VI.A.3.1 Aimant permanent équipé

En raison du diamètre de 13 mm des échantillons de CNT, nous avons été contraints de remplacer notre aimant permanent précédent par un modèle légèrement plus grand. Nous avons choisi un aimant, représenté dans la Figure VI-4, en néodyme-fer-bore (Ne-Fe-B) avec un diamètre interne de 19 mm et une hauteur de 16 mm, afin de disposer suffisamment d'espace dans la source d'ions pour accueillir la pastille de CNT ainsi que les connexions électriques nécessaires. Cet aimant est déjà magnétisé à une valeur de 0,14 T sur l'axe et est classé UH, ce qui signifie qu'il peut fonctionner à des températures allant jusqu'à environ 180°C sans perdre ses propriétés magnétiques.

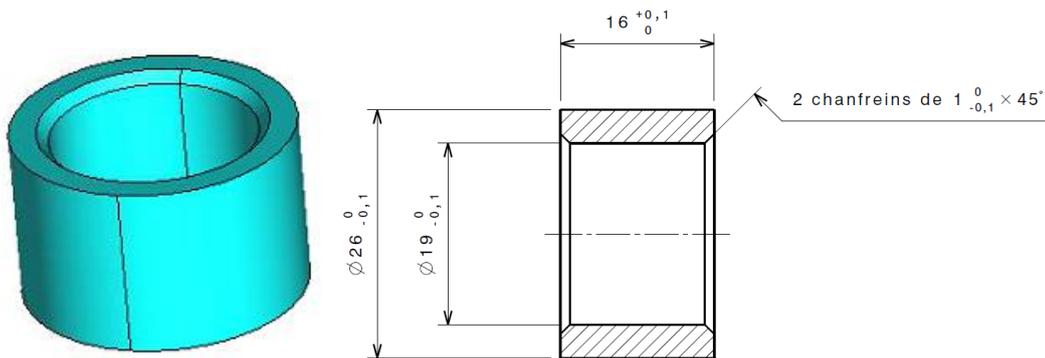


Figure VI-4 : Géométrie du nouvel aimant permanent et sa modélisation dans CST

De plus, afin de séparer physiquement l'aimant de l'espace d'ionisation et d'éviter toute contamination de ce dernier dans la source d'ions, il est essentiel de l'entourer d'une cage aimant hermétique. Cette cage protège non seulement l'aimant mais nous est utile pour la mise à la masse de l'espace d'ionisation.

#### VI.A.3.2 Anode

Pour respecter les résultats de nos simulations, nous avons conservé un cylindre creux de 8 mm de diamètre placé au centre du champ magnétique. Nous avons cherché à maintenir exactement la même géométrie que celle de notre source d'ions actuelle. Cependant, nous avons dû modifier les connexions, qui étaient auparavant intégrées à l'anode, pour les adapter à notre nouvelle source.

Le matériel de l'anode peut influencer significativement la quantité d'ions créés, comme l'a démontré A. Sy en 2013 . Nous avons réalisé une étude similaire en interne, présentée en Annexe VIII.G, où nous

avons testé différents matériaux pour l'anode de notre source d'ions actuelle. Les résultats obtenus n'ont pas justifié un changement de matériau, et nous avons donc choisi de continuer avec de l'acier inoxydable 316L.

#### VI.A.4 CATHODE EXTRACTRICE

Grâce à la présence d'un gaz de deutérium, des ions moléculaires majoritairement  $D_2^+$  (mais aussi  $D^+$  et  $D_3^+$ ) sont créés par interactions entre les électrons et les molécules du gaz. S'il y a suffisamment de gaz, l'ionisation s'entretient et devient stable créant un plasma dans la cavité. Une partie des ions créés sont attirés par la haute tension émise par l'accélératrice, visible dans la source d'ions grâce à la cathode extractrice

La figure ci-dessous présente la géométrie modélisée dans les simulations du logiciel CST Studio pour la cathode extractrice de la SI CNT. Elle est identique à celle présente dans notre source d'ions actuelle du tube Sodilog en forme de chapeau avec un trou de 5 mm de diamètre.

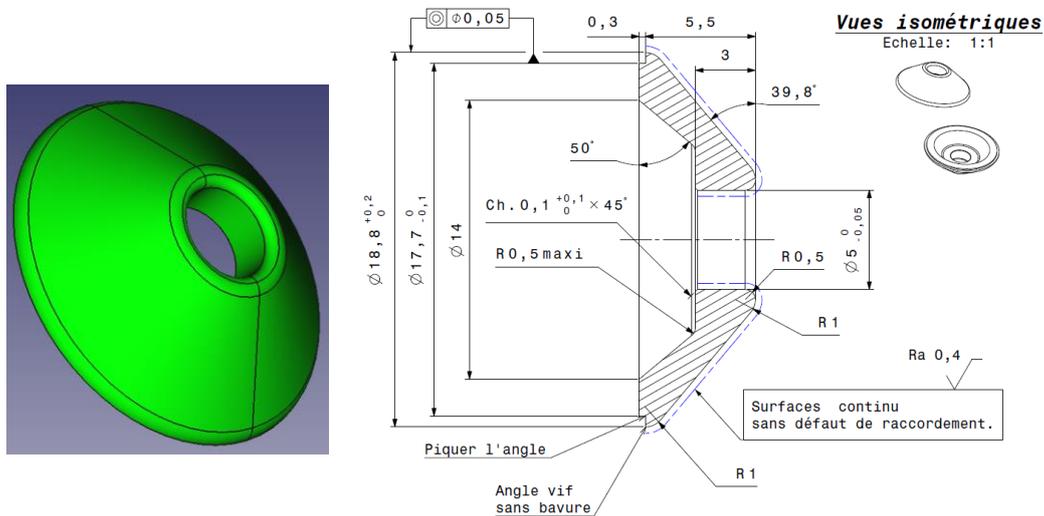


Figure VI-5 : Cathode extractrice

#### VI.A.5 INTERFACES

##### VI.A.5.1 Interface mécanique

La maquette SI CNT doit s'interfacer correctement avec le Support Source d'Ions du Banc d'essai Epsilon, comme illustré dans la Figure VI-6 .

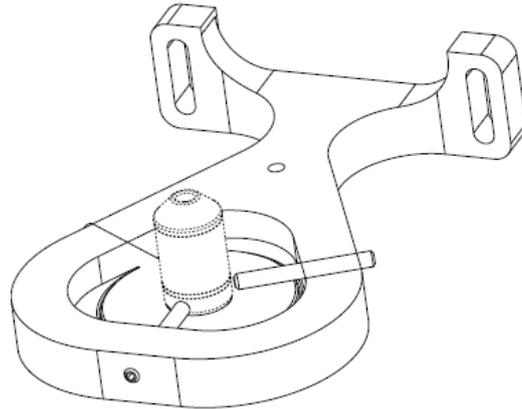


Figure VI-6 : Vue 3D de l'ensemble Support Source d'ions équipé

Pour garantir la fixation, la maquette SI CNT sera maintenue au centre du support Source d'Ions du Banc EPSILON à l'aide des trois vis « pointeau » sans tête. La conception de la maquette inclura donc une couronne métallique avec un diamètre externe ne dépassant pas 50 mm. Ce choix de design assure également la continuité électrique avec le reste du bâti, qui est connecté à la masse. Le support Source d'Ions est lui-même monté sur une platine 3-axes permettant de changer sur quelques millimètres la position de la maquette afin de l'aligner avec les différents instruments du Banc EPSILON.

#### VI.A.5.2 Interface électrique

Concernant les interfaces électriques, la source est fonctionnelle lorsque les CNT sont placés dans un champ électrique (soit avec une différence de potentiels entre les CNT et la grille G1) et que les éléments Grille G2 et Cage Aimant sont à la masse, alors que l'anode centrale est polarisée. Nous pouvons retrouver l'ensemble de ces tensions sur la Figure VI-7 et décrit par la suite.

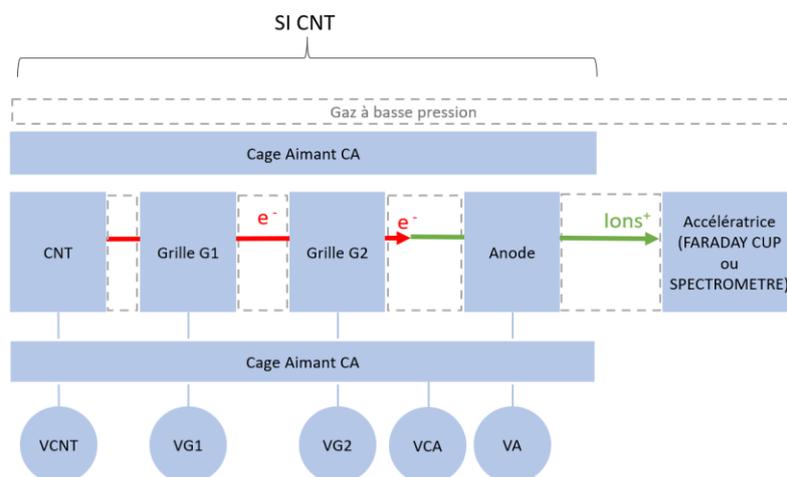


Figure VI-7 : Interfaces électriques de la SI CNT

Les différentes sources de Tension sont les suivantes :

- **VCNT** : Potentiel négatif appliqué à l'échantillon de CNT de -10 V à -1000 V permettant l'émission électronique jumelée à VG1 ;
- **VG1** : Potentiel positif de la grille d'extraction G1 allant de 0 à 1000 V. L'association des potentiels VCNT et VG1 permet de définir la quantité d'électrons entrant dans l'Espace d'Ionisation. Le potentiel VCNT définit l'énergie de ces électrons (si VG2 est égal à 0 V) ;
- **VG2** : Potentiel de la grille G2 porté à la masse (soit identique celle du Banc EPSILON) qui ralentit les électrons et limite les perturbations de ligne de champs de l'Espace Ionisation causées par l'Ensemble Emission Electronique ;
- **VCA** : Potentiel de la Cage Aimant correspondant au potentiel extérieur de l'Ensemble Espace d'Ionisation et de l'Ensemble Cathode Extractrice soit la masse électrique du Banc Epsilon et à la grille G2 (0 V) ;
- **VA** : Potentiel de l'Anode qui modifie la trajectoire des électrons émis par les CNT, typiquement autour de milles volts générés par une alimentation pouvant débiter de l'ordre du micro-ampère (ordre de grandeur du courant électronique généré) ;

Ces potentiels peuvent être appliqués de manière continue ou pulsée, à l'exception de VG1 et VCA qui sont connectés à la masse électrique du banc.

Il est prévu des zones spécifiques sur les sous-ensembles pour pouvoir apporter ces potentiels sur des surfaces conductrices. Ces différents potentiels devront être isolés les uns des autres, soit par le vide, soit par une pièce mécanique en isolant diélectrique (céramique ou autre) afin d'éviter les risques de court-circuit et de claquage électrique en cas de trop grande proximité (voir loi de Paschen décrite dans le chapitre 2).

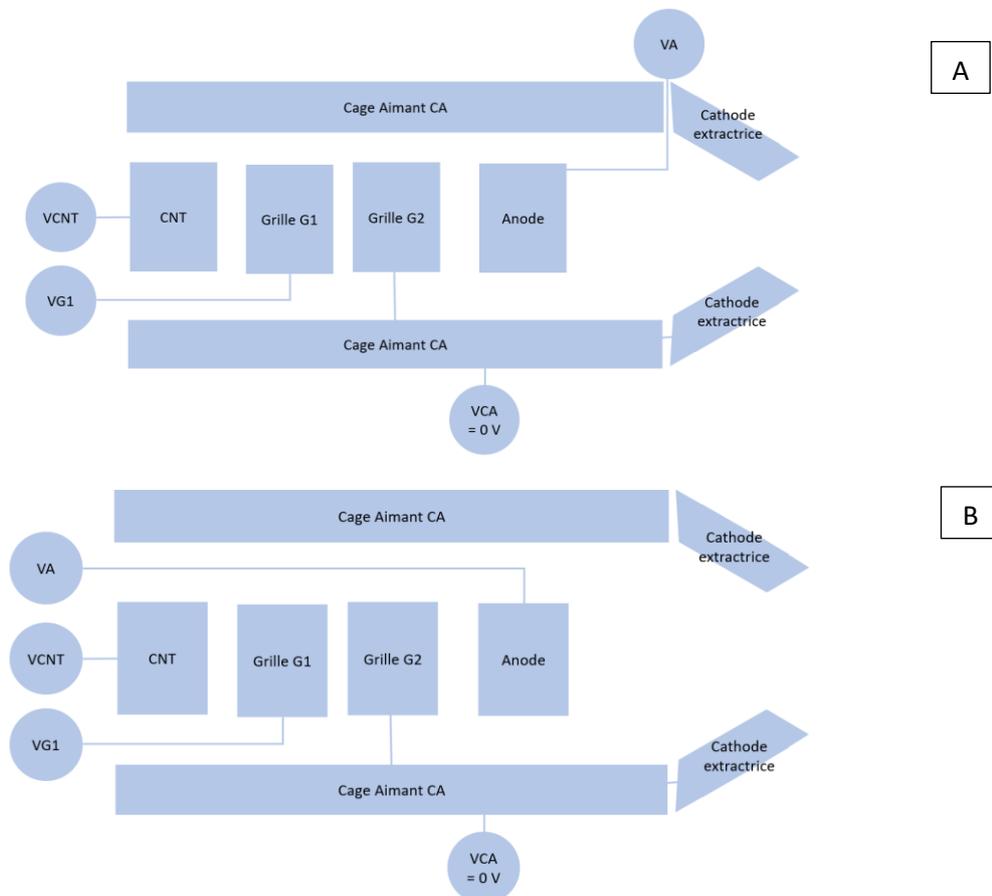


Figure VI-8 : Configurations possibles pour la disposition des interfaces électriques

Les connexions de la maquette pourront être effectuées de deux manières : à l'extrémité inférieure, sous l'échantillon de CNT (configuration B), grâce à des traversées électriques adaptées, ou latéralement pour VA, en passant entre la Cage Aimant et la Cathode Extractrice (configuration A). On retrouve un schéma des deux configurations dans la Figure VI-8.

Dans la mesure du possible, les sorties de connexion seront adaptées pour une future intégration de la Source SI CNT en tube neutronique.

#### VI.A.6 GÉOMÉTRIE FINALE

Nous avons collaboré avec le bureau d'études interne à Sodern pour concevoir le design final de la maquette. Notre choix s'est finalement porté sur la configuration électrique B, qui centralise toutes les traversées électriques au niveau de la source d'électrons. Cette configuration offre également l'avantage que la maquette soit entièrement démontable et interchangeable, ce qui nous permet de tester différents échantillons de CNT sans effectuer de modifications.

Dans les sections suivantes, vous trouverez les plans détaillés de la maquette ainsi que les particularités géométriques qui ont été ajustées pour répondre aux contraintes techniques et géométriques. Le Tableau VI-2 présentera les différentes nomenclatures associées aux plans de la Figure VI-9 : Vue sagittale de la maquette SI CNT, illustrant ainsi la structure et l'organisation des composants de la maquette.

Nomenclature (ASSY*)	Désignation	Repère	Matériau
<b>29721</b>	Isolant G2 CNT	05	
<b>29713</b>	Cathode	08	Inox 316L
<b>29717</b> • <b>29714</b> • <b>29715</b> • <b>401114513720</b>	Cage Aimant assemblée • Enveloppe Interne • Enveloppe externe • Aimant	07 • 03 • 01 • 02	Inox 316L Inox 316L NeFeB
<b>29905</b>	Isolant G1 CNT	03	PEEK
<b>29904</b>	Support SI CNT	09	Inox 316L
<b>29903</b>	Isolant support substrat	01a/b	PEEK
<b>29719</b>	Grille extraction	04	Molybdène
<b>29880</b> • <b>29723</b> • <b>29879</b>	Anode assemblée • Anode • Tige Anode	06 • 01 • 02	Inox 316L
<b>29718</b> <b>29969</b>	Substrat CNT	02a/b	Aluminium ou silicium
<i>Tableau VI-2 : Nomenclature de la maquette SI CNT</i>			

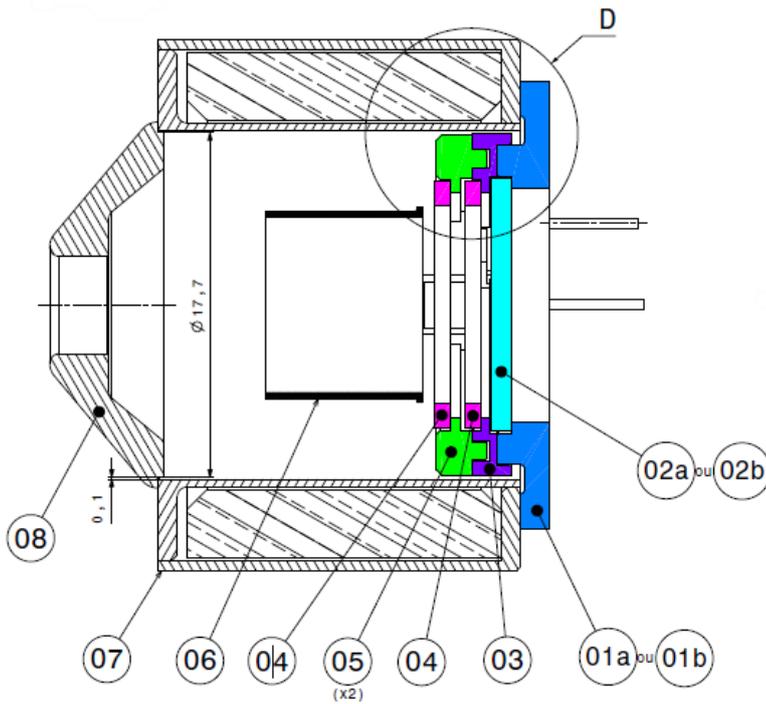


Figure VI-9 : Vue sagittale de la maquette SI CNT

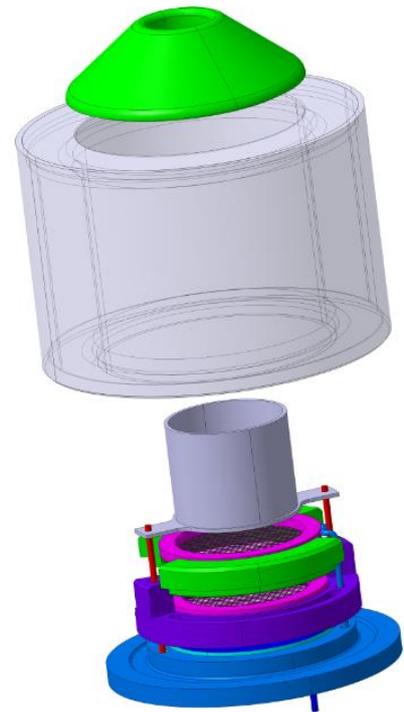


Figure VI-10 : Vue 3D éclatée de la maquette SI CNT

La Cage Aimant, de la Figure VI-11, a été assemblée par soudure laser. Un double passage a été effectué sur la soudure interne afin d'assurer que la soudure prenne toute l'épaisseur de la pièce, augmentant ainsi les chances d'étanchéité. Un nettoyage et un test de ressuage à l'hélium de l'étanchéité est ensuite effectué, consistant à placer la pièce sous hélium pendant 2 heures à 2 bars de pression. La mise sous vide est ensuite réalisée jusqu'à atteindre une pression de  $10^{-9}$  mbar pour vérifier l'étanchéité. Si l'étanchéité n'est pas respectée, la pression ne descendra pas en dessous de  $10^{-4}$  mbar.

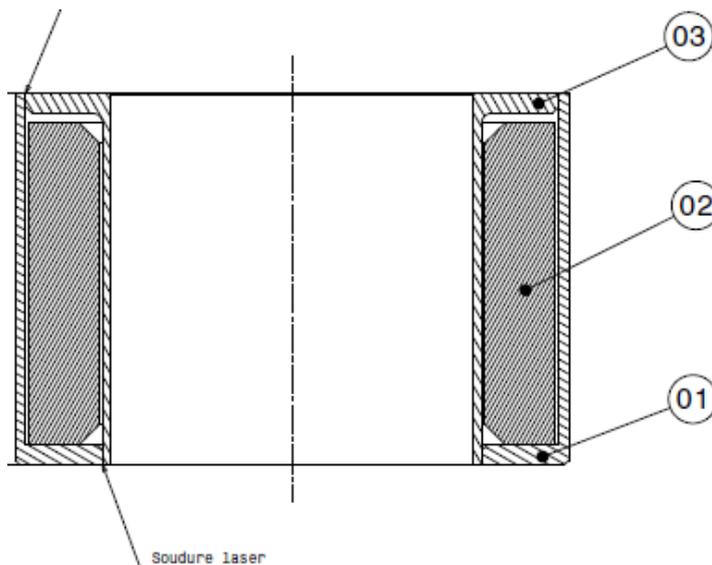


Figure VI-11 : Cage aimant assemblée

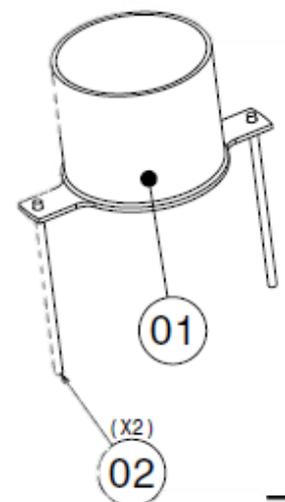
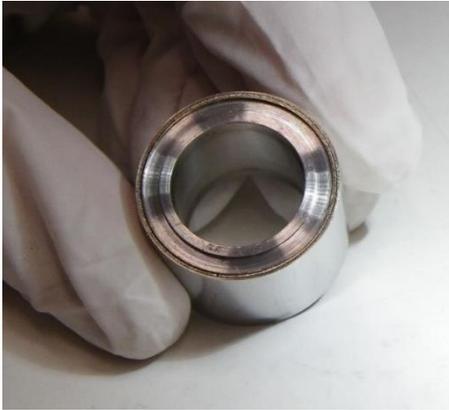
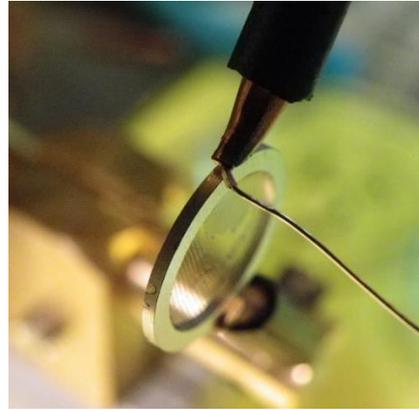


Figure VI-12 : Anode assemblée

Toutes les autres soudures, de l'anode assemblée, de la cathode extractrice et des différentes tiges de connexion ont été réalisées en interne chez Sodern (soudure TIG ou soudure électrique par point). Celles de la Cage Aimant peuvent être observées sur la Figure VI-12. En raison de la finesse des grilles, l'utilisation de manchons a été nécessaire pour garantir une fixation solide et précise. Un exemple de ces assemblages est montré sur les *Figure VI-13* et *Figure VI-14*.



*Figure VI-13 : Soudure cage aimant*



*Figure VI-14 : Soudure Grille*

Nous allons, dans la suite du chapitre, décrire le banc d'essai utilisé pour tester cette maquette, ainsi que les essais effectués.

## *B. PRESENTATION DU DISPOSITIF EXPERIMENTAL*

### *VI.B.1 BANC D'ESSAI EPSILON*

Le banc d'essai utilisé est le banc EPSILON développé par Sodern en 2020/2021 et illustré dans la Figure VI-15. Il a été conçu spécifiquement pour tester la viabilité de nouveaux concepts de sources d'ions, sous ultravide et en injectant du gaz à basse pression, tout en permettant à la fois :

- Une analyse électrique, réalisée via une Faraday Cup qui permet de mesurer et de collecter les ions émis par la SI ;
- Une analyse chimique, à l'aide d'un spectromètre de masse, qui détermine la composition chimique du faisceau d'ions (ions monoatomiques ou moléculaires, polluants métalliques ou autres...).



Figure VI-15 : Vue 3D du banc EPSILON

Pour les tests décrits par la suite, seul l'usage de la Faraday Cup est retenu.

#### VI.B.1.1 Collection des ions à l'aide d'une Faraday cup

La fonction principale de cette dernière est de collecter tous les ions émis sur une même électrode, désignée comme la Cible (ou Cup), où le courant électrique généré ( $I_{ion}$ ) est proportionnel à la dérivée du nombre de charges électriques collectées par rapport au temps. Pour assurer la précision des mesures de courant ionique, la Faraday Cup est conçue pour éliminer les électrons secondaires et isoler uniquement la composante ionique du courant collecté. Il faut faire en sorte que les électrons émis au niveau de la Cible rebouclent vers l'électrode d'où ils sont émis.

Ainsi, dans le bilan des charges collectées/émises, il y aura un équilibre pour les électrons et leur contribution au courant mesuré sera annulée. Pour cela, on utilise l'autopolarisation. Cela se matérialise par une simple résistance placée entre les deux électrodes (la cible et l'accélératrice). Lorsqu'un courant traverse cette résistance, une différence de potentiel est générée aux bornes de la résistance, selon la loi d'Ohm. Cette différence de potentiel entraîne la polarisation de la Cible par rapport à l'Accélératrice, ce qui permet de créer un champ électrique dirigé. Il est possible d'utiliser un piégeage magnétique mais celui-ci peut créer des interférences magnétiques avec notre source d'ions.

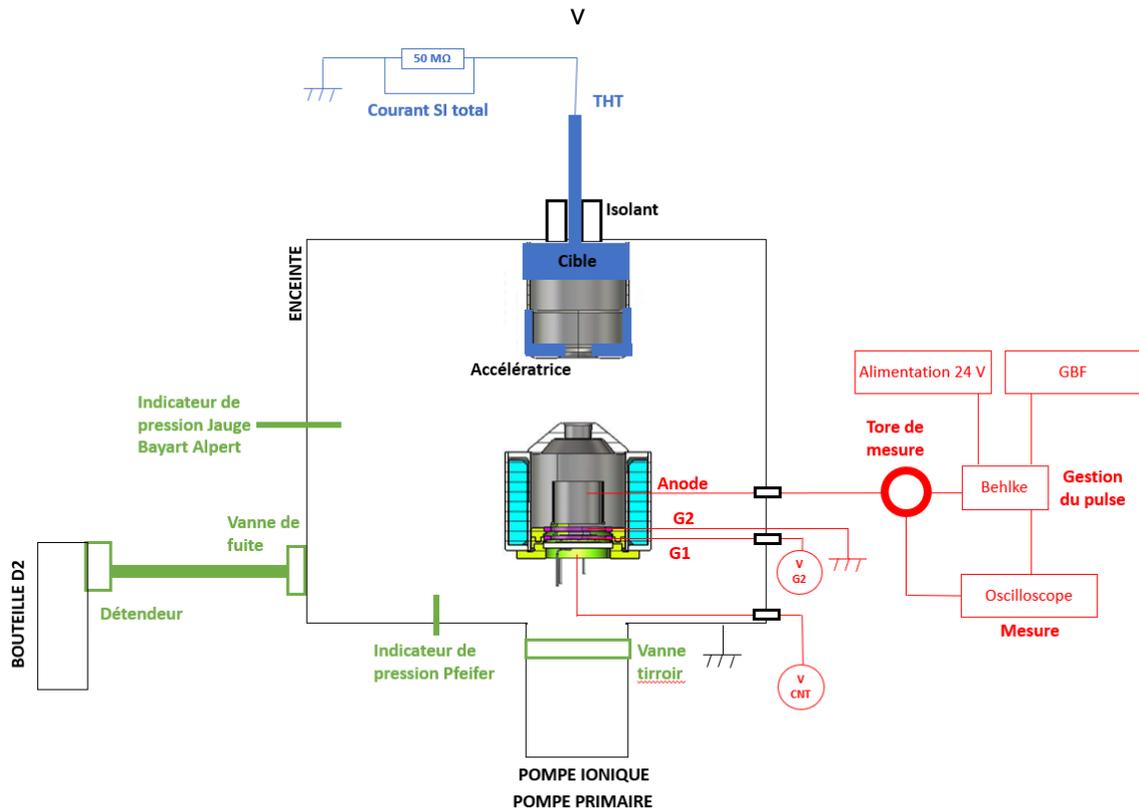


Figure VI-16 : Schéma électrique simplifié pour la Faraday Cup

La Cible de la Faraday Cup est fabriquée en cuivre OFHC (*Oxygen-Free High thermal Conductivity*), choisi pour ses propriétés de conductivité thermique élevée, et l'accélératrice, en Inox 316L, est polarisée à une haute tension (THT) négative de -20 kV. Il est à noter que la THT utilisée sur l'accélératrice est significativement inférieure à celle utilisée dans nos tubes neutroniques, qui varie entre -70 et -100 kV. Cette différence est compensée par une distance minimisée entre la source d'ions et l'accélératrice. Un schéma électrique de notre source d'ions dans le banc est présenté dans la figure V-14.

### VI.B.1.2 Mesure électrique

Les mesures électriques ont été réalisées directement par relevés sur les alimentations stabilisées de laboratoire (*DC power supply*) ou sur un oscilloscope numérique. L'ensemble des appareils utilisés pour la mise sous tension est présenté dans la Figure VI-17.

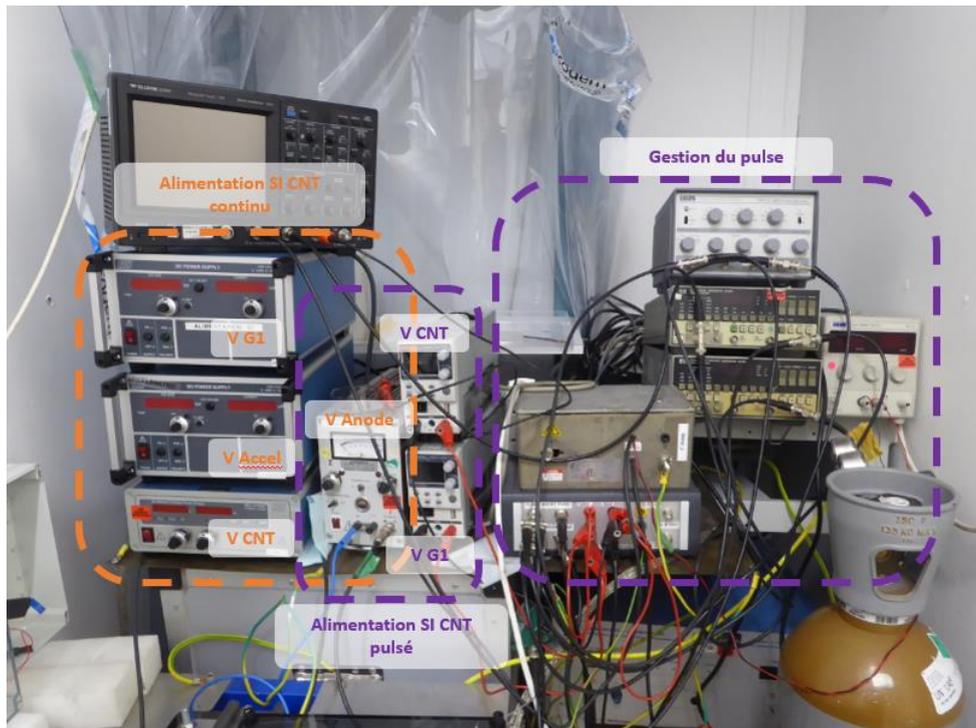


Figure VI-17 : Appareils de mesure et d'alimentation de la SI CNT. La bouteille de gaz injecté est également visible en bas à droite.

### VI.B.1.3 Pression interne en gaz à ioniser

Le vide est fait au sein de l'enceinte par une pompe primaire à palette sèche et deux pompes secondaires turbo-moléculaires (dont une spécialement pour le spectromètre de masse). Ce système est conçu pour atteindre des niveaux d'ultravide, approximativement  $\sim 10^{-10}$  mbar. Pour réguler la pression en deutérium, une vanne de fuite est connectée à l'enceinte. L'objectif est d'atteindre un niveau de vide similaire à celui d'un tube à neutrons au repos, soit entre  $10^{-8}$  et  $10^{-7}$  mbar, et une pression en deutérium comparable à celle d'un tube en fonctionnement, soit entre  $10^{-5}$  et  $5 \times 10^{-2}$  mbar. Lors de nos essais en deutérium, nous gardons en permanence un pompage actif en ne refermant pas complètement la vanne tiroir de la pompe primaire pour faciliter la stabilisation de la pression.

La pression est mesurée par deux jauges : une jauge Bayard-Alpert (JBA) et une jauge capacitive. La première est utilisée dans une gamme de pression de  $5 \times 10^{-10}$  à  $10^{-3}$  mbar alors que la seconde couvre de  $10^{-5}$  à 0,11 mbar. Nous utiliserons les valeurs des deux jauges selon que nous sommes avec ou sans injection de gaz.

Avant d'entamer les mesures sur le banc EPSILON, l'enceinte est dégazée. L'intérêt est d'aider à éliminer les gaz et les impuretés qui sont adsorbés sur les parois de l'enceinte et sur les surfaces des électrodes. Pour cela, le banc est étuvé à  $150^\circ\text{C}$  tout en étant soumis à un pompage continu, et refroidi. De même, à chaque ouverture, le banc est mis sous surpression sous azote pour limiter la contamination à l'air humide environnant.

### VI.B.2 ASSEMBLAGE DE LA MAQUETTE

Nous nous retrouvons avec tous les éléments avant assemblage, présentés dans la Figure VI-18 . Ces pièces sont nettoyées et assemblées comme précisé dans la section Géométrie finale.

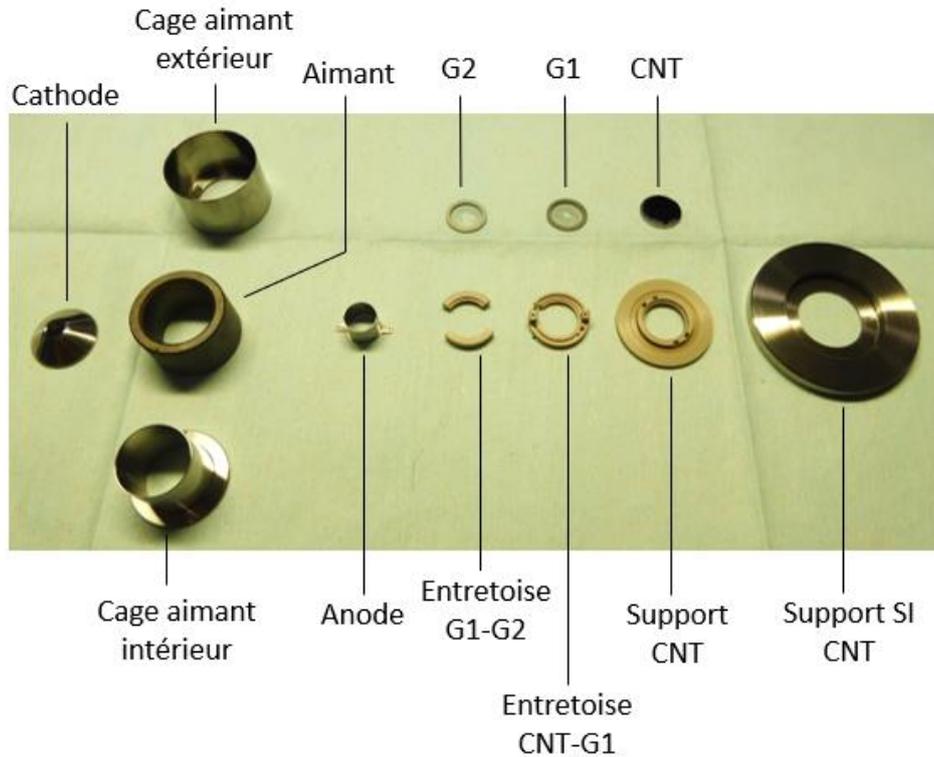


Figure VI-18 : Éléments individuels de la SI CNT avant montage

### VI.B.3 MONTAGE EN BÂTI

Lors du montage dans le banc EPSILON, chaque fil de cuivre, utilisé pour amener les différentes tensions, a été formé en « S » afin de limiter les accrocs sur les pièces de la source d'ions. Les fils reliés aux pièces sont attachés à des fils présents sur le bâti à l'aide de dominos spécial vide. Chaque pièce est pré-montée avec précision, puis câblée, et finalement positionnée en utilisant les fils pour orienter correctement chaque pièce.

Voici la liste des étapes de montage de la SI :

- Positionnement de la pièce reliant le bâti à la masse ;
- Première pièce (PEEK) orientée de manière que les trous soient à midi, avec le fil du fond pour la grille G1 ;
- Positionnement des CNT ;
- Préformation des fils de cuivre déjà présents sur le bâti ;
- Insertion de la grille G1 dans son passage dans la pièce PEEK ;
- Raccordement électrique avec domino ;
- Positionnement de la grille G1 dans son logement ;
- Installation des cales en PEEK ;
- Répétition des mêmes étapes pour la grille G2 ;
- Insertion de l'Anode dans les trous ;

- Raccordement électrique de l'Anode avec des dominos placés de chaque côté ;
- Raccord électrique au scotch carbone des CNT en maintenant le tout par l'Anode ;

Positionnement de l'aimant en maintenant l'Anode en Inox ;

Positionnement de la cathode sur la Cage Aimant ;

On retrouve, dans les figures une photo de la source d'ions CNT dans le bâti EPSILON, en entrée et la visualisation d'un plasma lors de son utilisation sur la Faraday cup.

Suite à des problèmes de courts-circuits et de claquages, nous avons dû ajouter à certains endroits des films Kapton, notamment sur les tiges de l'anode. Le plus notable est celui entre l'anode et la grille G2, qui a été découpé par une machine de découpe laser pour recouvrir parfaitement le contour de la grille tout en gardant un espace central vide au niveau de l'intérieur de l'anode. On le retrouve en photo dans la Figure VI-19.



Figure VI-19 : Scotch Kapton entre l'Anode et G2



Figure VI-20 : SI CNT sur le porte échantillon

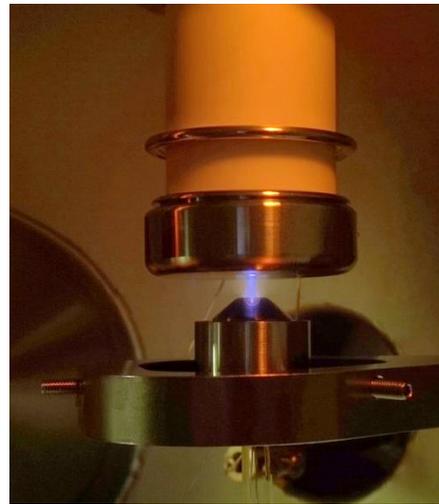


Figure VI-21 : Plasma d'azote de la SI CNT face à la Faraday Cup

### C. CAMPAGNE D'ESSAIS

#### VI.C.1 MODE PULSÉ

Pour faciliter la compréhension du lecteur, nous allons présenter tous les résultats en mode pulsé en suivant le mode « C/O », couramment utilisé lors des diagraphies pétrolières et qui reprend les paramètres temporels décrits dans la Figure VI-22 :

- $T_{\text{excitation}}$  : durée d'excitation électrique des électrodes polarisées ;
- $T_{\text{répétition}}$  : période de répétition (égal par définition à l'inverse de la fréquence de répétition  $f$  des impulsions électrique ;
- $T_{\text{électrique}}$  : taux de travail ou rapport cyclique électrique simplement égal à  $T_{\text{excitation}} / T_{\text{répétition}}$ .

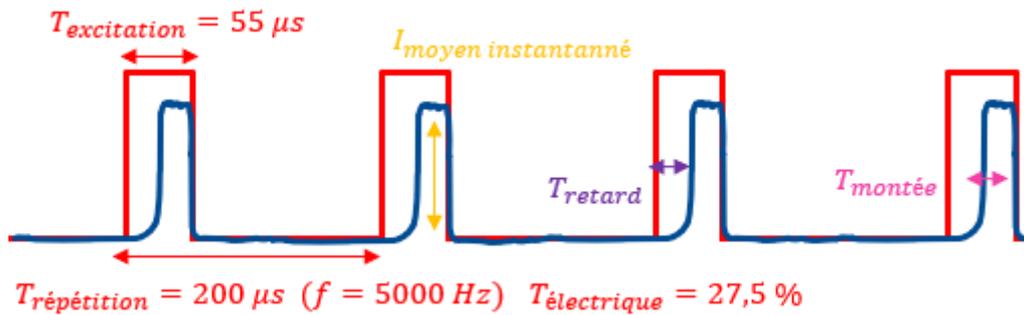


Figure VI-22 : Paramètres des séquences impulsionnelles répétées « C/O »

Pour chaque essai pulsé nous mesurerons également les grandeurs suivantes relatives au courant impulsionnel de décharge plasma dans la source d'ions et collectés par l'Anode :

- $I_{\text{moyen instantané}}$  : valeur crête, moyennée sur le plateau de la décharge en courant ;
- $T_{\text{retard}}$  : retard à l'amorçage égal au décalage temporel entre l'impulsion électrique de commande et le front de montée à mi-hauteur de la décharge ;
- $T_{\text{montée}}$  : durée du front de montée typiquement défini entre 10% et 90% de l'amplitude de la décharge.

### VI.C.2 ESSAIS SI DE RÉFÉRENCE

Pour nos comparaisons, nous pouvons nous reposer sur des tests effectués sur ce banc de test en 2020 sur la source d'ions actuelle. Ces essais nous ont permis de valider la pression équivalente dans le bâti pour nos tubes neutroniques. Sachant que notre retard à l'amorçage était de  $28 \mu\text{s}$ , nous nous sommes placés à une pression donnant ce retard, soit à  $1,89 \times 10^{-3}$  mbar. L'ensemble des caractéristiques de la source d'ions actuelle est précisé dans le Tableau VI-3. Notre objectif, avec la source d'ions SI CNT, est de retrouver des paramètres semblables et/ou améliorés.

Pression (mbar)	$1,89 * 10^{-3}$
Temps de retard ( $\mu\text{s}$ )	$28 \pm 0,2$
$I_{\text{moyen instantané}}$ (mA)	2,25
$I_{\text{total SI}}$ (mA)	423

Tableau VI-3 : Paramètre de la SI actuelle

On retrouve, dans la Figure VI-23, un exemple d'un pulse C/O de notre source actuelle.

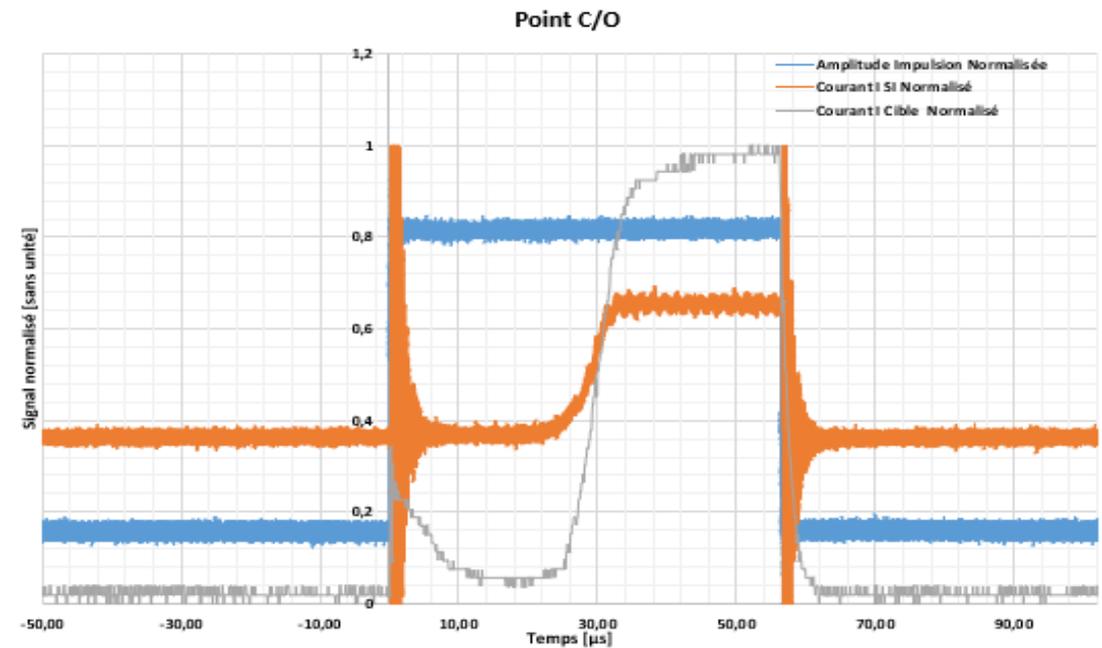


Figure VI-23 : Impulsions de la SI actuelle en mode C/O (en bleu, tension de l'Anode, en orange, courant de décharge de la SI et en gris, courant ionique collecté par la Faraday cup)

Les mesures réalisées sur nos tubes, indiquent que le courant instantané d'ions extraits se situe généralement entre environ 400 µA et 1 mA pour les points de fonctionnement habituels. Le courant d'ions extrait moyen ne dépasse pas la limite autorisée par l'alimentation de l'accélératrice de la Faraday Cup soit 1,2 mA.

### VI.C.3 ESSAI SI SANS CNT

Avant d'utiliser les CNT, il est intéressant de caractériser notre source d'ions sans elles. En effet, notre aimantation, notre espace d'ionisation et notre tension anodique diffèrent de ceux de la source d'ions actuelle. Nous effectuons tout d'abord une variation de la pression, afin de retrouver soit un retard à l'amorçage de 28 µs, soit un courant instantané de 2,25 mA. Cela nous permet d'obtenir la Figure VI-24, traçant le temps de retard et le courant moyen instantané en fonction de la pression.

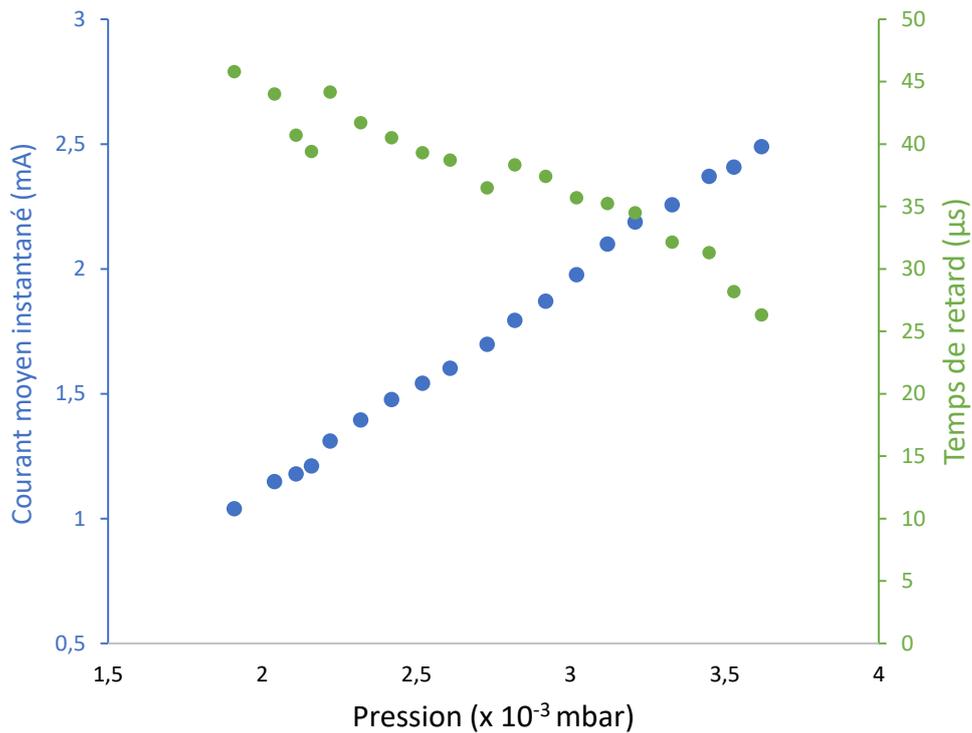


Figure VI-24 : Courant Plateau et temps de retard de la SI sans l'utilisation des CNT

On remarque que le courant moyen instantané augmente de manière presque linéaire avec l'augmentation de la pression, tandis qu'à l'inverse, le retard à l'amorçage diminue. Ce dernier démarre avec une valeur d'environ  $45 \mu\text{s}$ , sur un pulse électrique de  $55 \mu\text{s}$ , à une pression de  $1,5 \times 10^{-3}$  mbar, et diminue jusqu'à environ  $25 \mu\text{s}$  à  $4 \times 10^{-3}$  mbar. Cette tendance indique que plus la pression est élevée, plus le temps nécessaire pour atteindre l'amorçage est court, ce qui est dû à une densité ionique plus élevée. Ces deux paramètres réunis se traduisent dans la courbe du courant ionique total extrait sur la cup de Faraday, présentée dans la figure correspondante.

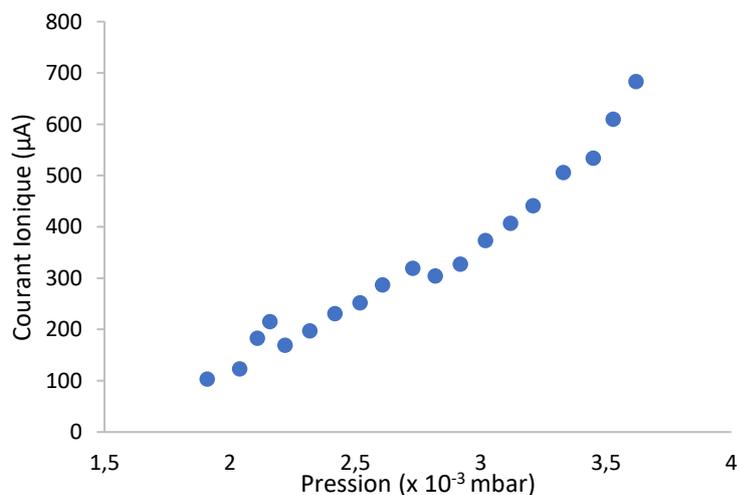


Figure VI-25 : Courant SI total de la SI sans l'utilisation des CNT

### VI.C.3.1 Impulsions

Si l'on regarde de plus près, chaque point, on obtient pour chaque pression un pulse dont certains sont représentés dans la Figure VI-26.

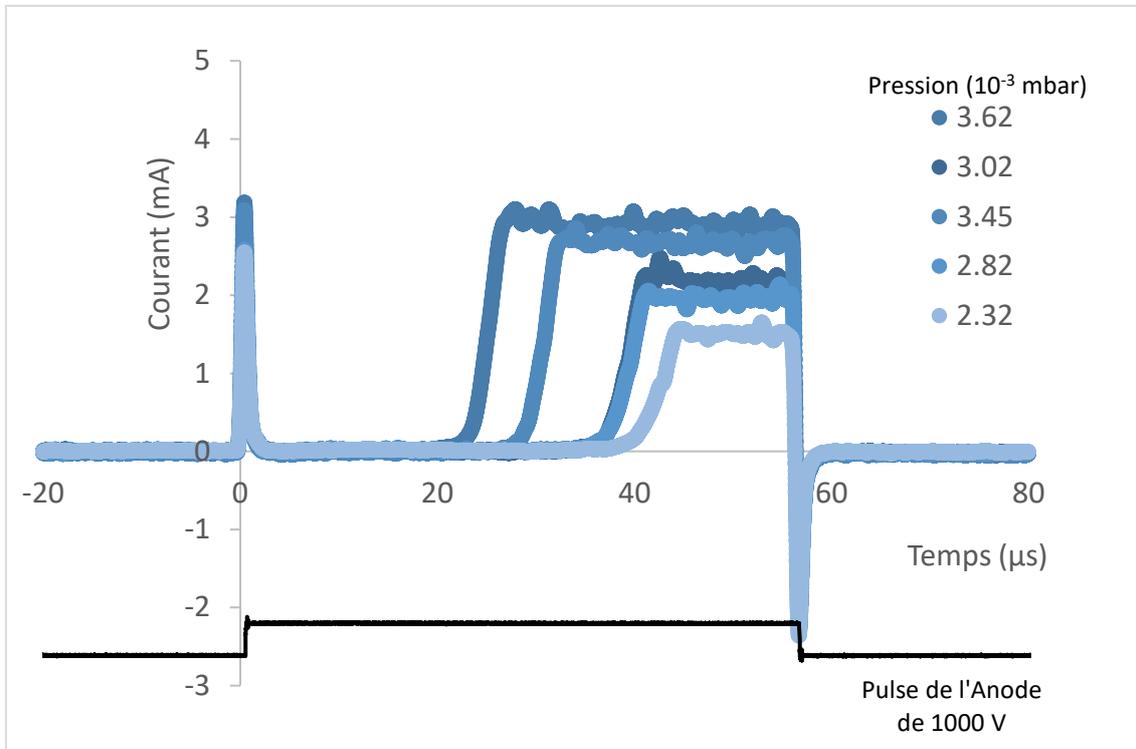


Figure VI-26 : Pulse ionique de la SI sans l'utilisation des CNT à différentes pressions

En comparaison avec la source d'ions actuelle du tube Sodilog présentée dans la section VI.C.2, nous avons obtenu un retard à l'amorçage de 28  $\mu\text{s}$  pour une pression de  $3,53 \times 10^{-3}$  mbar et un courant instantané de 2,408 mA. Cependant nous sommes à une tension d'anode divisée par deux qui va jouer sur la création des électrons et donc sur la création du plasma.

On retrouve des phénomènes déjà bien connus :

- Une augmentation progressive du courant moyen en fonction de la pression
- La diminution du retard à l'amorçage en fonction de la pression

Ces tests nous servent de référence pour la comparaison avec la source avec activation des CNT.

### VI.C.3.2 Histogrammes du temps de retard

Grâce à l'oscilloscope numérique, nous pouvons générer des histogrammes sur le temps de retard, qui sont présentés dans la Figure VI-27. Cela nous a permis de confirmer les temps de retard par notre instrument en regard de ces histogrammes.

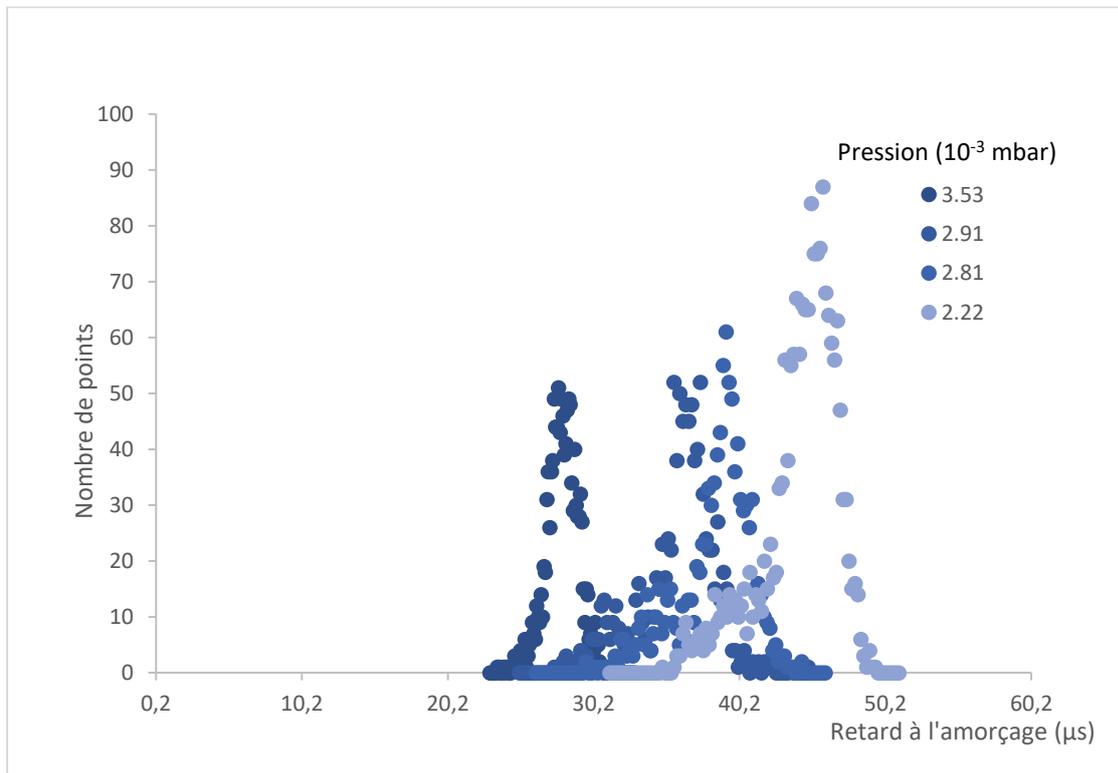


Figure VI-27 : Histogrammes du temps de retard pour la SI sans l'utilisation des CNT à plusieurs pressions

On remarque que chaque histogramme ne suit pas une distribution gaussienne mais plutôt une loi normale asymétrique avec un étalement plus marqué sur la partie gauche de la courbe. Cela s'explique par le fait que la pression influence le minimum de temps de retard, mais ce dernier peut être plus court si les électrons interagissent plus facilement : à même pression, le temps de retard peut être plus facilement réduit que prolongé.

Nous utiliserons par la suite ces histogrammes pour calculer le *jitter*, soit la demi-largeur à mi-hauteur de ces distributions et qui est donc un bon indicateur de la variabilité du retard à l'amorçage et donc de la stabilité de la source.

#### VI.C.4 CARACTÉRISATION EXPÉRIMENTALE DE LA SI CNT

Avant l'utilisation de la SI, nous avons souhaité tester l'émissivité de chaque échantillon utilisé. Nous avons réalisé des "phases de vieillissement", présentées dans le chapitre 4. Ensuite, nous avons testé leur émissivité en appliquant une polarité de -100 ou -150 V aux CNT et 1000 V à l'anode. Le potentiel de G1 a varié de 150 à 500 V. Nous avons mesuré les courants collectés sur G1, l'anode et les CNT. La grille G2 étant reliée à la masse à l'intérieur de l'enceinte, nous ne pouvons pas connaître le courant qui y circule.

Le graphique de la Figure VI-28 illustre les mesures d'émissivité des nanotubes de carbone (CNT) en fonction du champ électrique appliqué, avec une comparaison entre les résultats de la simulation et les données expérimentales obtenues pour différentes tailles de CNT. Les résultats expérimentaux montrent que la hauteur des CNT ne semble pas influencer de manière significative leur émissivité, ce

qui est une observation surprenante mais attendue, comme nous l'avons remarqué dans la section Répétabilité du chapitre IV, compte tenu de l'augmentation du champ électrique et de la taille.

L'émissivité est dépendante de l'échantillon ce qui souligne la variabilité intrinsèque entre différents lots ou préparations de CNT. Cette variabilité peut être attribuée à des différences microscopiques dans la structure ou la composition chimique des CNT. Cette préoccupation concernant cette répétabilité est pertinente, car elle affecte directement la fiabilité des CNT pour des applications industrielles où des performances stables sont essentielles.

La courbe de simulation présente dans le graphique montre des valeurs d'émission plus élevées que celles observées dans les expériences. Cette divergence entre les données simulées et expérimentales soulève des questions sur les hypothèses intégrées dans les modèles numériques, notamment en ce qui concerne les conditions idéales versus les conditions expérimentales réelles. On peut également se questionner sur la répétabilité de nos mesures, en particulier sur un dispositif tenant seulement par gravité avec l'anode dessus qui maintient le tout et donc une possible différence de hauteur entre chaque test.

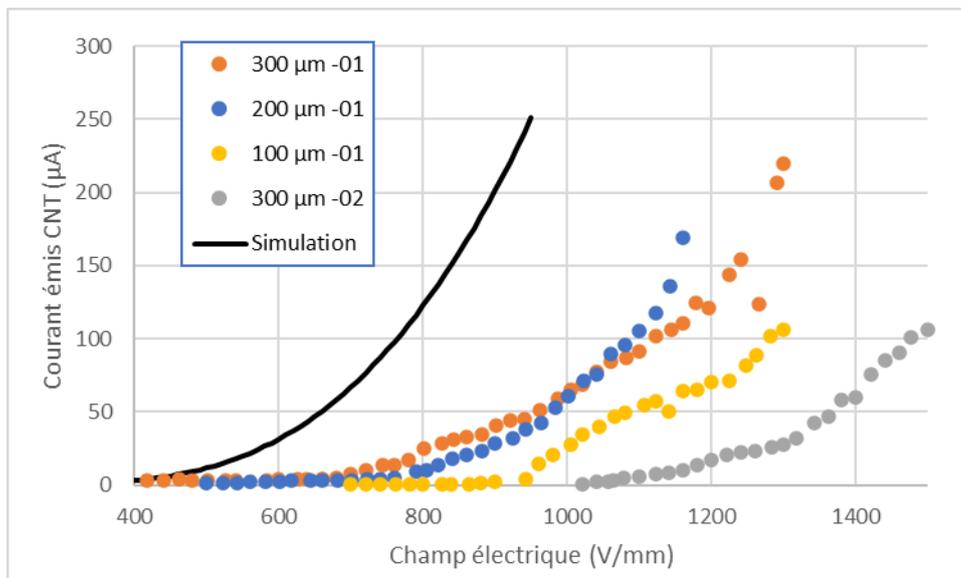


Figure VI-28 : Comparaison courant d'émission des échantillons de CNT

En plaçant la tension des CNT entre -100 et -150 V et la grille G1 entre 400 et 450 V, nous avons cherché à maintenir une émission des CNT comprise entre 50 et 100 µA. L'échantillon gris de 300 µm, peu émissif, n'a finalement pas été retenu pour nos essais.

## VI.C.5 TEST CI CNT

### VI.C.5.1 CNT en continu

On utilise notre source d'ions avec des CNT en continu. Pour cela nous avons fixé la tension sur G1 et sur les CNT et uniquement pulsé la tension appliquée à l'anode centrale. Le graphique 2 illustre le comportement de la source d'ions avec CNT sous différentes pressions qui peut être comparé aux résultats obtenus sans CNT de la Figure VI-26.

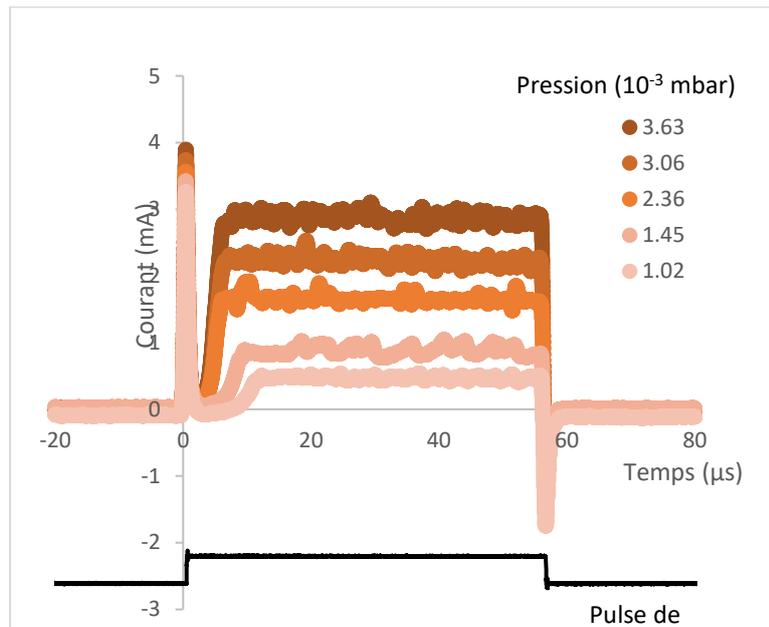


Figure VI-29 : Courant Plateau et temps de retard de la SI sans l'utilisation des CNT

Contrairement à la source d'ions sans CNT, l'utilisation de CNT permet d'initier l'ionisation à des pressions nettement inférieures, démarrant à  $1,02 \times 10^{-3}$  mbar comparé à  $1,91 \times 10^{-3}$  mbar. Les mesures montrent que le temps de retard à l'amorçage est considérablement réduit avec l'utilisation des CNT, commençant à 10 µs contre 45 µs. Cette réduction initiale est suivie d'une diminution progressive jusqu'à atteindre un palier à environ 3,25 µs. Pour rappel la demande était d'avoir un retard de 28 µs. Le courant moyen instantané varie avec la pression, allant de 0,8 mA à basse pression jusqu'à 2,23 mA à plus haute pression. Comme observé pour la source sans CNT, on retrouve une stabilité du courant moyen instantané.

Comme pour la source d'ions sans CNT, nous avons pu obtenir des histogrammes du temps de retard de notre source, représentés dans la Figure VI-30. Ces histogrammes montrent que le temps de retard varie de 1,02 à 4,5 µs. La convergence vers un temps de retard de 4,5 µs est illustrée par l'empilement de trois histogrammes distincts.

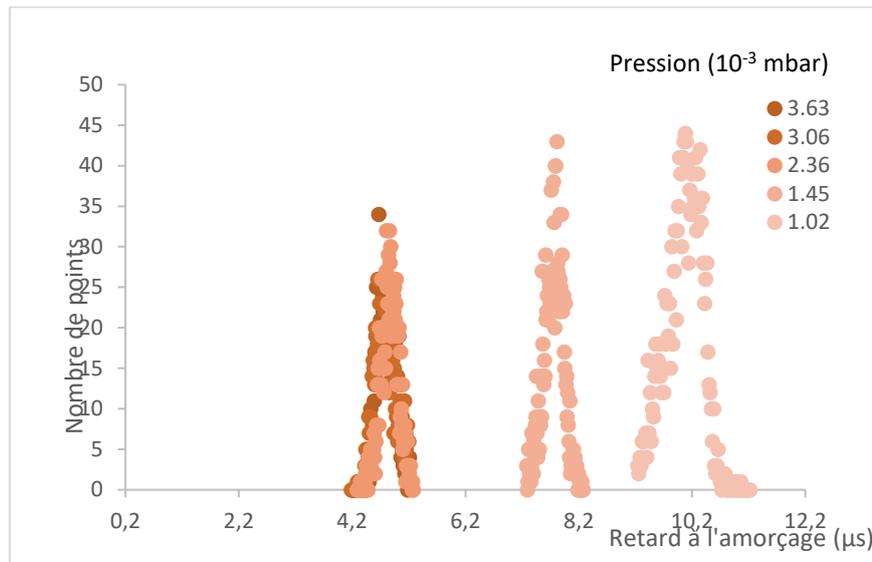


Figure VI-30 : Histogrammes du temps de retard pour la SI CNT continu à plusieurs pressions

### VI.C.5.2 SI CNT en mode pulsé

Nous avons ensuite voulu vérifier si, en pulsant les CNT et G1, nous pouvions utiliser l'hystérésis présentée dans la section IV.B.4 pour réduire davantage le retard à l'amorçage. Cependant, les tests n'ont pas permis d'obtenir des résultats significatifs car l'échantillon de CNT a cessé de fonctionner à une pression de  $2,5 \times 10^{-3}$  mbar stoppant nos essais.

## D. ANALYSE DES RÉSULTATS

### VI.D.1 COMPARAISON DES DIFFÉRENTES CONFIGURATIONS

Dans cette section, nous évaluons les performances de la SI en examinant les trois configurations :

- En bleu, les courbes de la SI sans l'utilisation des CNT ;
- En orange, les courbes de la SI avec les CNT en continu ;
- En gris, les courbes de la SI avec les CNT en pulsé.

Lors de l'analyse du courant plateau moyen présenté dans la Figure VI-31, le courant de la SI sans CNT est légèrement supérieur. Toutes les configurations suivent la même tendance : le courant augmente linéairement avec la pression.

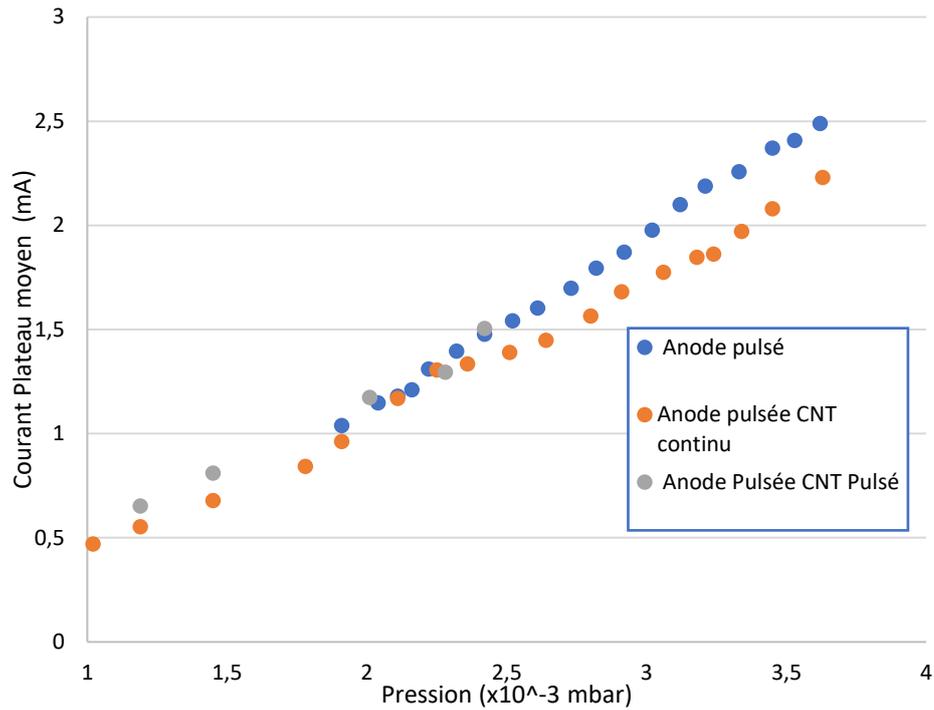


Figure VI-31 : Comparaison des courants plateau moyen

Lorsque nous examinons le temps de retard à l'amorçage dans la Figure VI-32, le temps de retard est significativement plus long pour l'anode pulsée sans CNT comparativement aux configurations avec CNT, indiquant que l'utilisation des CNT que ce soit en mode continu ou en mode pulsé. On retrouve même à basse pression en pulsé un temps de retard pouvant valider l'hystérésis.

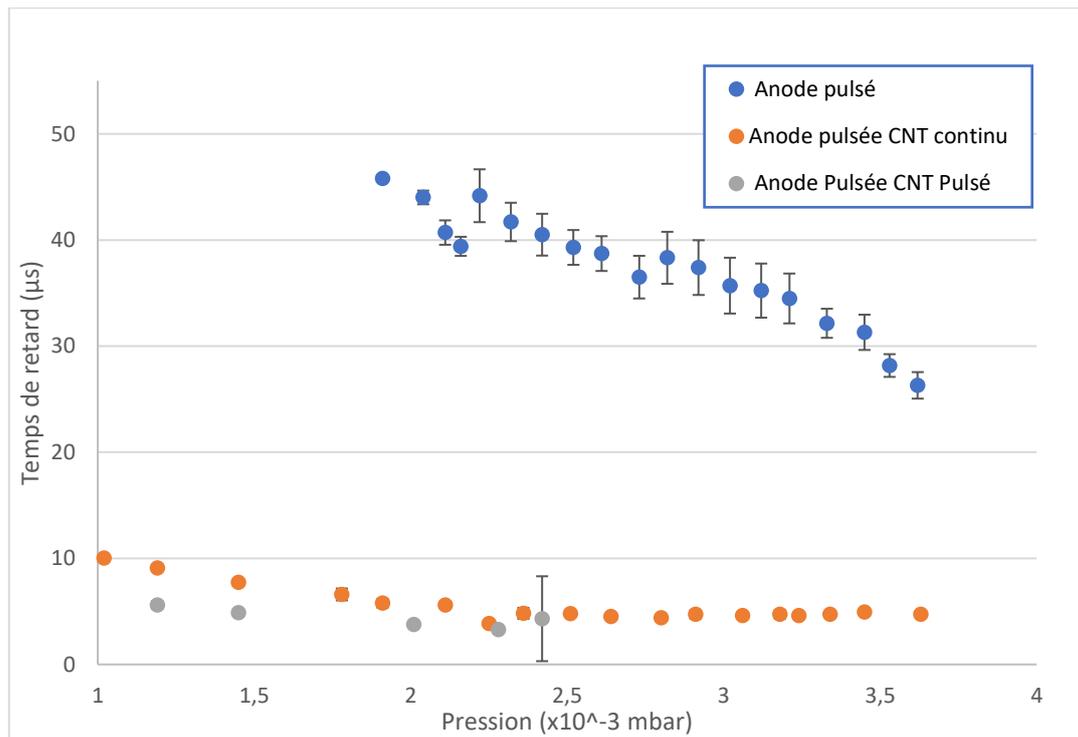


Figure VI-32 : Comparaison des temps de retard à l'amorçage

Les phénomènes retrouvés sur ces deux graphiques se traduisent sur la Figure VI-33 avec le courant total de la SI, qui a une pression minimum de  $1,02 \times 10^{-3}$  mbar est supérieur aux caractéristiques de notre source d'ions actuelle de  $423 \mu\text{A}$ , alors que nous avons diminué à l'intérieur le courant de l'anode centrale.

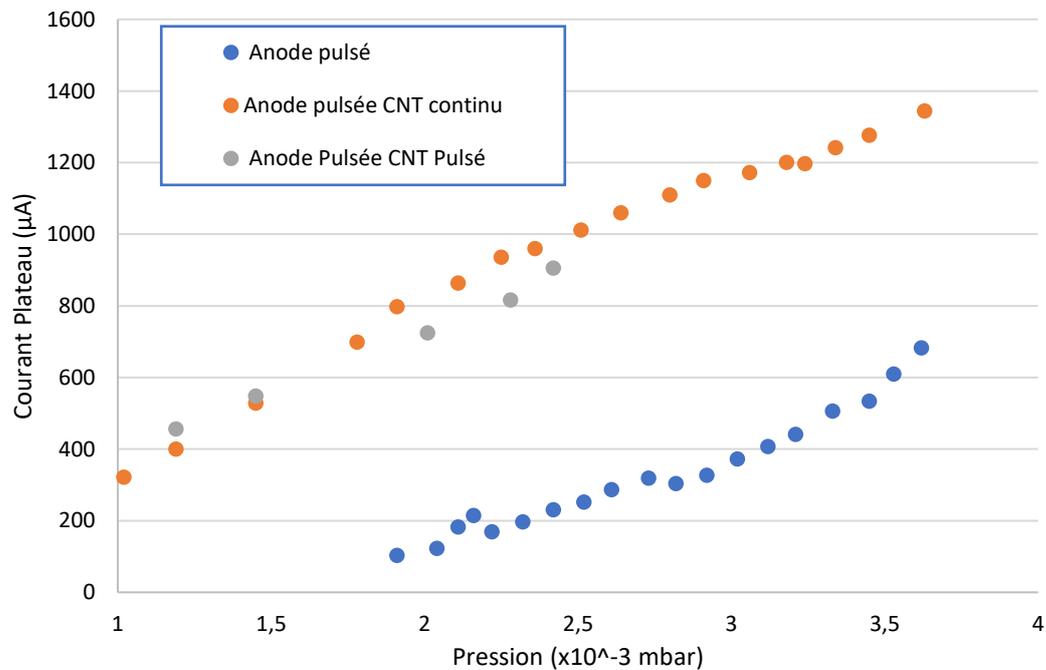


Figure VI-33 : Comparaison des courants ioniques crêtes collectés par la Faraday cup

Un autre phénomène important à mettre en avant est la réduction du jitter, représenté par la Figure VI-34. Ce dernier correspond à la largeur à mi-hauteur de l'histogramme du temps de retard, présenté dans les Figure VI-27 et la Figure VI-30. Cette diminution est d'autant plus marquée qu'elle est normalement plus difficile à obtenir dans un environnement de deutérium par rapport à un gaz mixte de deutérium/tritium.

Cette régularité est avantageuse pour les algorithmes de calcul qui sont utilisés par la suite dans l'analyse de la matière.

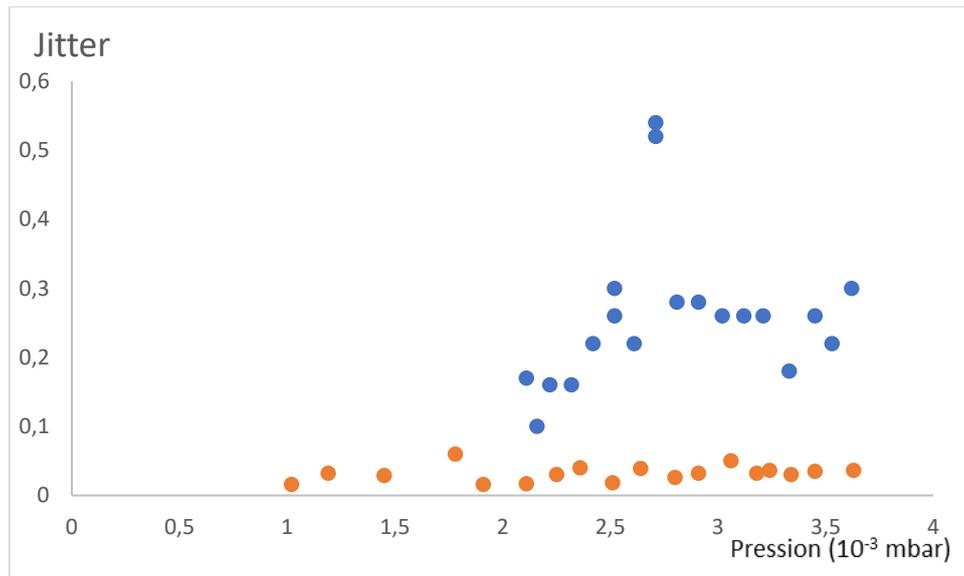


Figure VI-34 : Comparaison des Jitter (en  $\mu$ s)

Cette section met en évidence l'impact positif des CNT sur la réduction du temps d'amorçage et la stabilisation du courant, contribuant ainsi à l'amélioration globale des performances de la source d'ions.

#### VI.D.2 COURANT MINIMUM POUR LIMITER LE TEMPS DE RETARD

A plusieurs reprises, nous avons observé que les CNT avaient une durée de vie limitée dans cette configuration de source d'ions (voir section VI.E.1). Cependant, il pourrait être envisageable d'adopter un autre positionnement ou d'utiliser un autre matériau comme source d'électrons.

Dans cette optique, il nous semblait intéressant de caractériser le courant minimum nécessaire pour réduire significativement le temps de retard, comme nous l'avons observé dans la Figure VI-32. Pour ce faire, nous avons choisi de nous placer à une pression faible où il y a un plasma dans la SI, mais dont le retard est suffisamment significatif pour que l'on observe une amélioration. Nous nous sommes placés à une pression de  $2,28 \times 10^{-3}$  mbar.

Nous avons maintenu la tension sur les CNT à -150 V et augmenté progressivement la tension de G1. L'objectif était de garder les électrons à l'entrée de l'espace d'ionisation avec la même énergie afin de

ne pas modifier leur parcours. Cela nous a permis d'obtenir la courbe de la Figure VI-35, traçant le temps de retard en fonction du courant injecté, ce dernier étant mesuré sur les CNT.

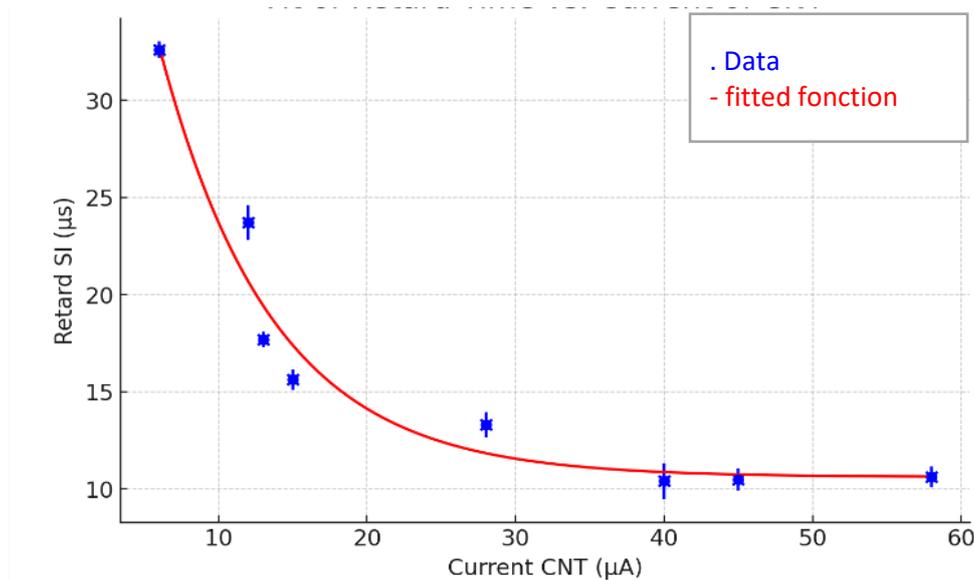


Figure VI-35 : Temps de retard en fonction du courant des CNT

Le graphique montre une tendance à la baisse du temps de retard à l'amorçage à mesure que le courant des CNT augmente, suggérant une relation inverse ou potentiellement non linéaire entre ces deux variables. En raison de cette tendance apparemment décroissante et potentiellement non linéaire, une régression exponentielle a été proposée, montrant une valeur asymptotique vers laquelle le temps de retard tend à converger, estimée à 10,60 µs. Cependant, nous n'avons pas inclus dans cette analyse le point correspondant à la SI CNT en mode continu où nous avons précédemment observé un retard de 4,2 µs, car le courant des CNT associé à ce point n'était pas précisément connu.

En conclusion de ce paragraphe, nous avons démontré l'intérêt de l'ajout d'une source d'électrons pour diminuer le temps de retard et réduire le jitter de notre source. Nous avons estimé qu'à une pression de  $2,28 \times 10^{-3}$  mbar, une injection de 30 µA était suffisante pour limiter le retard. Cependant, il s'avère que disposer les CNT au fond de l'espace d'ionisation n'est pas la solution idéale en raison d'une dégradation précoce de ces derniers.

## E. DÉGRADATION DES CNT

### VI.E.1 CONSTAT

Un phénomène nous a contraint à interrompre plusieurs fois nos essais : une détérioration de l'émissivité des échantillons de CNT. Après quelques heures d'utilisation sous plasma, l'émission des CNT se dégradait fortement jusqu'à un arrêt complet. Le questionnement principal porte donc sur l'origine de cet arrêt : s'agit-il d'un arrachement des CNT ou d'un recouvrement inhibant leur capacité à émettre des électrons ?

On retrouve dans la Figure VI-36 des photos prises au microscope binoculaire de deux de nos échantillons. L'échantillon 200  $\mu\text{m}$ -01 après l'essai de la SI sans utilisation des CNT et en second, l'échantillon 300  $\mu\text{m}$ -01 post-essai SI CNT avec les CNT en mode continu.

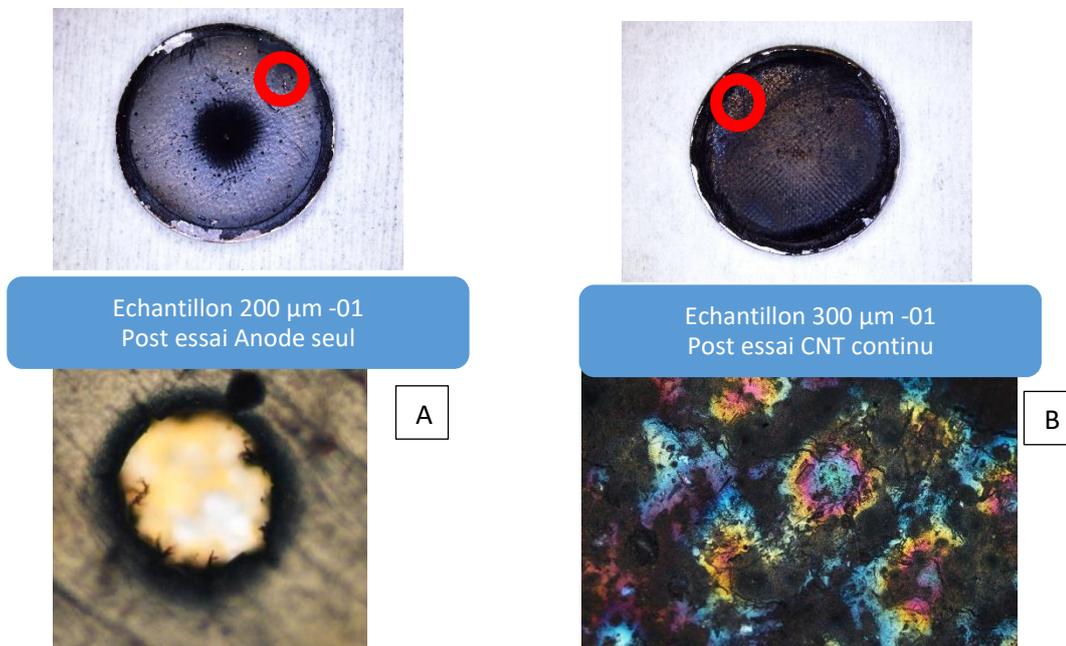


Figure VI-36 : photographies des CNT après utilisation

Lors de l'inspection de zones où les CNT et l'aluminium étaient visibles, comme indiqué dans le point de l'image A, des agrégats de CNT étaient clairement observables. De plus, la photographie B montre un motif de grille avec une teinte sur les CNT qui suggère la présence possible d'éléments métallique. Afin de vérifier ou de réfuter cette hypothèse de métallisation, nous avons fait fonctionner notre source d'ions pendant 96 heures pour déterminer si ce phénomène était effectivement dû à une métallisation.

#### VI.E.2 TEST DE CNT SOUS PLASMA PENDANT 96H

Nous observons un échantillon nettement plus dégradé, comme le montre la Figure VI-37, où le motif de grille, déjà évoqué dans la photo b, est visible de manière bien plus marquée.



Figure VI-37 : Échantillon de CNT avec un zoom sur le motif de grille et la métallisation

Un point central est visible dans la Figure VI-, correspondant au retour d'électrons secondaires de la cible. Ces derniers, ayant une énergie de 20 keV, parviennent jusqu'au centre du fond de la SI. Ce phénomène a été observé sur nos sources actuelles et a été confirmé par une analyse qui a révélé une concentration plus élevée de cuivre à cet endroit.

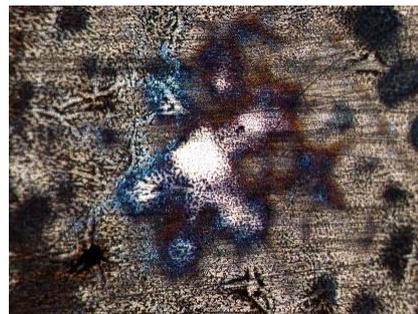


Figure VI-38 : Zone centrale de l'échantillon

Nous avons tenté de déterminer la composition de cette métallisation à l'aide d'un MEB et d'une analyse par dispersion d'énergie de rayons X (EDX).

Element	AN Series	Net un.	C norm.	C Atom.	C
		[wt.%]	[wt.%]	[at.%]	
oxygène8	K-series	69	5.33	33.14	54.54
silicium14	K-series	280	5.31	33.02	30.96
fer26	K-series	27	2.15	13.37	6.31
chrome24	K-series	28	1.52	9.46	4.79
molybdène42	L-series	35	1.33	8.25	2.26
cuivre29	K-series	2	0.44	2.75	1.14
Total:		16.08	100.00	100.00	



Figure VI-38 : Analyse EDX de l'échantillon

En éliminant le carbone et l'aluminium, qui constituent le dépôt CNT et le substrat, nous obtenons les résultats présentés dans la Figure VI-. L'oxygène, inhérent à l'analyse MEB, nous laisse avec du silicium, du chrome et du fer. Le silicium est le résultat de la vitrification de l'alumine présente uniquement entre l'accélérateur et la cible. Il peut également provenir du Kapton utilisé (gel silicone pour le collage). Le chrome et le fer sont des composants de l'Inox 316L de l'anode centrale. De même, nous avons détecté cette métallisation sur le Kapton placé entre G2 et l'anode.

Cette métallisation a été observée sur les sources d'ions actuelles et des expertises sont actuellement en cours pour mieux comprendre ce phénomène et ses implications.

### VI.E.3 POLLUTION DES CNT

Une autre problématique survenue au cours des essais est la pollution par les CNT du bâti et de la source d'ions. Des échantillons de CNT ont été retrouvés à plusieurs endroits, créant des passages électriques indésirables, par exemple entre l'anode et les CNT ou sur les grilles, comme le montre la Figure VI-38 lors du nettoyage de cette dernière. De même, des CNT ont été retrouvés sur l'accélérateur, causant des problèmes de mesure en raison de l'émission d'un courant important.



Figure VI-38 : pollution des CNT sur les grilles



## CONCLUSION GÉNÉRALE ET PERSPECTIVES

---

Après trois chapitres introductifs présentant respectivement la physique du neutron, la structure des tubes neutroniques scellés commercialisés par Sodern et les sources d'électrons, en particulier celles à effet de champ à base de nanotubes de carbone, pouvant avantageusement être intégrées dans les sources d'ions des tubes, ce manuscrit présente les résultats obtenus tout au long de ces travaux de thèse qui se sont déroulés entre 2020 et 2024.

Grâce aux études bibliographiques ayant permis de faire un point sur l'état de l'art concernant l'utilisation des nanotubes de carbone comme source d'électrons permettant un apport contrôlé et salubre de ces particules élémentaires chargées négativement, nous avons pu initier ce travail de recherche visant à intégrer un tel émetteur dans la source d'ions des tubes neutroniques scellés. En effet, l'une des principales limitations des sources d'ions mises en œuvre dans la génération actuelle des tubes neutroniques fabriqués par Sodern réside dans la difficulté à générer des impulsions de plasma ayant une durée répétable grâce à un retard à l'amorçage bien maîtrisé et si possible le plus faible possible.

Nous pensons que l'injection contrôlée d'électrons dans la chambre d'ionisation de ces sources d'ions nous permettra à la fois d'améliorer les performances de la source d'ions en termes de consommation électriques mais aussi de mieux maîtriser les caractéristiques temporelles des impulsions de plasma et donc des impulsions neutroniques induites par ces tubes pour l'analyse de la matière.

La première étape, décrite dans le chapitre 4, a consisté à vérifier que les sources d'électrons par effet de champ avec des nanotubes de carbone pouvaient s'opérer dans les conditions d'utilisation d'un tube neutronique, à savoir : une pression environnante de gaz dihydrogène (ou de ses isotopes, deutérium et tritium) sur une gamme de  $10^{-4}$  à  $10^{-2}$  mbar, avec un fonctionnement pulsé sur quelques centaines, voire milliers d'heures et avec des températures pouvant être relativement élevée jusqu'à 200°C. Pour cette démonstration, une approche empirique a été employée, en testant des échantillons de cathodes CNT dans un bâti sous vide permettant de contrôler les paramètres expérimentaux. Ces tests se sont avérés concluants car, quelle que soit la configuration mise en œuvre, nous avons réussi à émettre quelques dizaines de  $\mu\text{A}$  de courant électronique malgré la variabilité entre les échantillons et les conditions d'essai.

Ainsi rassurés par la capacité des CNT à continuer d'émettre des électrons sous basse pression de dihydrogène, l'étape suivante, thème du chapitre 5, a consisté à dimensionner une source d'ions équipée d'une telle source d'électrons. Pour ce faire, nous nous sommes appuyés sur un logiciel de simulation numérique permettant d'étudier le transport de particules chargées dans un champ électromagnétique, dans une géométrie complexe en 3D : il s'agit du logiciel CST Studio. Les simulations numériques nous ont permis de vérifier l'influence de certains paramètres d'entrée sur les performances de la source d'ions en cherchant à optimiser la probabilité d'interaction des électrons émis par les cathodes CNT dans notre chambre d'ionisation. Il a d'abord fallu déterminer la configuration optimale du canon à électron avec une structure d'extraction reposant sur deux grilles de haute transparence parallèles, distantes de 1 mm et positionnées en face de la cathode CNT. Ensuite il a fallu ajuster les potentiels pour que les électrons soient injectés avec une énergie cinétique optimale pour générer des ionisations, autour de 100 eV. Enfin, nous avons réalisé une étude de sensibilité sur la géométrie de l'anode et son positionnement relatif par rapport à l'aimant permanent. Cette anode génère un champ électrique axial permettant de confiner les électrons dans la source d'ions et de maintenir la décharge de Penning tant que l'anode est polarisée. Nous avons finalement

étudié le couplage entre la valeur de la haute tension appliquée à l'anode et la valeur du champ magnétique de l'aimant avec une configuration intéressante à 1000 V pour un champ magnétique de l'aimant de 0,75 T.

Grâce à ce prédimensionnement assisté par simulation numérique, nous avons pu rédiger des spécifications techniques détaillées à destination de notre bureau d'études afin de concevoir une maquette mécanique et électrique de source d'ions intégrant une source d'électrons avec une cathode CNT en tenant compte des données mais aussi des contraintes d'assemblage, d'utilisation de matériaux sous vide, d'usinage et d'interfaces mécaniques et électrique avec le banc de test qui a permis de tester cette maquette .

Le design de cette maquette est présenté dans le chapitre 6. Après une phase d'approvisionnement, nous avons pu assembler cette maquette et la tester dans le Banc EPSILON de Sodern, dédié à la caractérisation des sources d'ions sous vide à l'aide d'une Faraday Cup permettant de mesurer le courant ionique extrait de la source d'ions et un spectromètre de masse dédié à l'évaluation de la composition chimique des espèces ioniques présente dans le faisceau d'ions. Ce banc de test permet de piloter la source d'électrons et la source d'ions en mode continu et pulsé tout en mesurant les signaux électriques d'intérêt et en ajustant la pression interne du gaz injecté dans la chambre.

Après avoir caractérisé cette nouvelle SI en ne faisant pas fonctionner la source d'électrons afin de comparer les performances initiales de cette maquette à notre source d'ions actuelle, nous avons ensuite pu mettre sous tension les CNT en continu puis en mode pulsé. Si les essais en mode pulsé ne se sont pas avérés concluants en raison d'une dégradation précoce de notre cathode CNT, l'émission en continu des CNT a permis de mettre en évidence une nette amélioration des performances de la source d'ions avec une réduction significative du retard à l'amorçage jusqu'à des valeurs inférieures à 10  $\mu\text{s}$  et ce même à basse pression. Nous avons également constaté une meilleure stabilité de ce retard avec un jitter sensiblement réduit. Enfin, si le courant de la décharge reste similaire à une pression donnée, le courant ionique extrait est augmenté d'un facteur 2, ce qui traduit une meilleure efficacité de la source alors que dans le même temps la haute tension appliquée à l'anode a été réduite d'un facteur 2 en passant de 2000 V à 1000 V. Enfin, un dernier essai a permis de quantifier le courant électronique nécessaire pour atteindre ces résultats très encourageants : un courant relativement faible de quelques dizaines de  $\mu\text{A}$  est en effet suffisant pour mettre en évidence ces effets.

Bien entendu, comme c'est souvent le cas dans les campagnes d'essais relatives à des applications novatrices, nous avons rencontré quelques difficultés expérimentales. Tout d'abord, la prolifération des CNT dans l'ensemble de la géométrie semble difficile à contrôler. Les CNT peuvent ainsi se retrouver dans des zones indésirables où règnent un champ électrique élevé, par exemple dans l'espace d'accélération du tube et devenir une source de courant parasite rendant délicat le pilotage du tube en courant et risquant de dégrader la fiabilité avec un risque accru de claquage électrique.

Nous avons également observé une dégradation irréversible, après quelques heures de fonctionnement seulement, des CNT réduisant à néant leur potentiel d'émission électronique. Ceux-ci se retrouvent en effet recouverts d'un dépôt métallique induit par l'interaction du plasma de la chambre d'ionisation avec les pièces métalliques avoisinantes, selon un mécanisme similaire à un dépôt de couche mince par PE-CVD (*Plasma Enhanced Chemical Vapor Deposition*) ou pulvérisation cathodique (en témoigne le motif en ombre des grilles sur le substrat qui ont fait office de « pochoir »). Ce phénomène délétère n'avait pas été vu lors du chapitre 4 car aucun plasma n'était généré avec moins de 100  $\mu\text{A}$  de courant produit, contre plusieurs mA dans le cas du fonctionnement de la source d'ions.

Enfin, une dernière difficulté consiste dans le fait de trouver une source fiable et pérenne d'approvisionnement de ces cathodes CNT avec une reproductibilité suffisante pour envisager l'intégration dans un produit récurrent fabriqués en petite série à Sodern (typiquement quelques dizaines d'exemplaires par an) tout en maîtrisant le coût de ces dernières.

Les résultats obtenus sont donc très encourageants pour nous motiver à poursuivre ces travaux selon deux axes distincts.

La première perspective, fort du résultat concernant le courant électronique seuil pour favoriser la décharge, serait d'étudier la possibilité de générer ces électrons d'une manière un peu plus simple que la source d'électrons mise en œuvre durant ces travaux, soit à l'aide d'une cathode chaude utilisée à faible puissance, d'une micro-pointe judicieusement placée ou tout simplement en dégradant volontairement l'état de surface des cathodes actuelles de la source d'ions pour favoriser l'émission d'électrons lorsque l'anode est mise sous tension. Cette approche permettrait de s'affranchir des différentes difficultés rencontrées avec les CNT.

L'autre possibilité, si l'on souhaite conserver les cathodes CNT, seraient de chercher à les protéger du dépôt métallique provoqué par l'interaction du plasma avec les parois métalliques. Nous pourrions ainsi imaginer une solution où les CNT ne seraient pas directement orientées vers la chambre d'ionisation et chercher à créer des électrons secondaires grâce aux électrons émis par les CNT. Ces électrons secondaires seraient ensuite dirigés vers la chambre d'ionisation par un champ électrique adéquat.

Dans les deux cas, la poursuite de ces travaux passera nécessairement par l'évaluation de nouvelles maquettes sur le banc EPSILON et en cas de résultats satisfaisants, une intégration en tube neutronique scellé pour évaluer le potentiel de cette application en conditions réelles et ainsi atteindre le niveau de maturité technologique suffisant pour un déploiement dans une nouvelle génération de tubes.



## VII. BIBLIOGRAPHIE

- A.Krishnan, E. T. (1998). Young's modulus of single-walled nanotubes. *Physical Review B*, 58(20).
- A.V. Arkhipov, M. M. (2007). Hysteresis of pulsed characteristics of field emission from nanocarbon materials. *Surface and Interface Analysis*, 39, 149-154. doi:10.1002/sia.2479
- Appleton. (1925). *On some direct evidence for downward atmospheric reflection of electric rays*. doi:https://doi.org/10.1098/rspa.1925.0149
- Ariharan, A., Viswanathan, B., & Nandhakumar, V. (2018). Nitrogen-incorporated carbon nanotube derived from polystyrene and polypyrrole as hydrogen storage material. *Int. J. Hydrogen Energy*. doi:https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2018.01.110
- ASN. (2018). *Les sources de rayonnements ionisants et les utilisations industrielles, vétérinaires et en recherche de ces sources*.
- Becquerel. (1896). Sur les radiations invisibles émises par les sels d'uranium. *C. R. Acad. Sci. Paris*, 122, 689-694. Récupéré sur <https://cds.cern.ch/record/475481>
- Berthod, A., & Carda-Broch, S. (2004, 01). Utilisation des liquides ioniques en analyse. *Actualité Chimique*(271). Récupéré sur <https://new.societechimiquedefrance.fr/numero/utilisation-des-liquides-ioniques-en-analyse-p24-n271/>
- BK.Das. (2011). In-House Development of D-D Neutron Generator. *Nuclear Physics*, 56, 1056-1057.
- Bodu, R., Bouzigues, H., Morin, N., & Pfiffelmann, J. (1972). SUR L'EXISTENCE D'ANOMALIES ISOTOPIQUES RENCONTREES DANS L'URANIUM DU GABON. *Geosciences*, 1731-1732. Récupéré sur <http://pascal-francis.inist.fr/vibad/index.php?action=getRecordDetail&idt=PASCALGEODEBRGM73220662>
- Bonard, J.-M. M. (2002). *Can we reliably estimate the emission field and field enhancement factor of carbon nanotube film field emitters?* Lausanne.
- Bothe, & Becker. (1930). Künstliche Erregung von Kern- $\gamma$ -Strahlen. *Zeitschrift für Physik*, 76, 421. doi:https://doi.org/10.1007/BF01336726
- Boulila, S. (2021). *Propriétés d'absorption de l'hydrogène sur un titane commercial pur Ti50A ayant subi du laminage à froid*. Université de Lorraine; Université du Québec à Trois-Rivières, Science des matériaux. Récupéré sur <https://hal.univ-lorraine.fr/tel-03354061>
- Brion, C. (2001). Imaging of orbital electron densities by electron momentum spectroscopy - A chemical interpretation of the binary (e<sub>2</sub>e) reaction. *Chemical Physics*. doi:10.1016/S0301-0104(01)00385-8
- Brune, C. R. (2015). Radiative Capture Reactions in Astrophysics. 65, 87-112. Récupéré sur <https://doi.org/10.1146/annurev-nucl-102014-022027>
- C. Thomsen, S. R. (1970). Raman Scattering in Carbon Nanotubes. *Proceedings of SPIE - The International Society for Optical Engineering*.
- C.Lee, X. J. (2008). Measurement of the Elastic Properties and Intrinsic Strength of Monolayer Graphene. *Science*, 321(5887), 385-388.
- CA.Spindt. (1968). A Thin-Film Field-Emission Cathode. *Journal of Applied Physics*, 39(3504).
- CANDU Fundamentals. (2004). Récupéré sur [https://canteach.candu.org/\\_layouts/15/osssearchresults.aspx?u=https%3A%2F%2Fcanteach%2Ecandu%2Eorg&k=CANDU%20Fundamentals](https://canteach.candu.org/_layouts/15/osssearchresults.aspx?u=https%3A%2F%2Fcanteach%2Ecandu%2Eorg&k=CANDU%20Fundamentals)

- Cappello, M. C. (1989). Description des collisions électroniques (e, 2 e) triplement différentielles : cas des cibles moléculaires. *Journal de Physique*, 207. doi:<http://dx.doi.org/10.1051/jphys:01989005002020700>
- Castro, C. (2009). Mécanismes de croissance de nanotubes de carbone alignés : relation catalyseur - nanotube.
- CEA. (2018, 02 7). *La fusion nucléaire par confinement magnétique*. Récupéré sur [cea.fr: https://www.cea.fr/multimedia/Pages/editions/posters.aspx](https://www.cea.fr/multimedia/Pages/editions/posters.aspx)
- CEA Valduc. (s.d.). *Cibles neutronigènes*.
- Chadwick. (1932). Existence of a Neutron. *Royal Society A*, 136(830), 692–708. Récupéré sur <https://doi.org/10.1098/rspa.1932.0112>
- Chahine, R. (2009). Gas adsorption process in activated carbon over a wide temperature range above the critical point. Part 1 & Par 2. *Adsorption*.
- Chapellier, D. (2011). Diagraphie pétrole. *Cours de Diagraphies Différées*. Lausannes. Récupéré sur [https://www-ig.unil.ch/pdf/doc\\_dia/diapet\\_f.pdf](https://www-ig.unil.ch/pdf/doc_dia/diapet_f.pdf)
- Cheol Ho Lee, J. S.-K. (2016). Measurement of Neutron Energy Spectrum Emitted by Cf-252 Source Using Time-of-Flight Method. *Transactions of the Korean Nuclear Society Autumn Meeting*. Gyeongju.
- Chepurnov. (2018). Compact neutron generator with nanotube ion source. *Journal of Instrumentation*, 13. doi:0.1088/1748-0221/13/02/C02035
- Chuanhong Jin, J. W.-M. (2005). *In-situ studies of electron field emission of single carbon nanotubes inside TEM*. doi:10.1016/j.carbon.2004.11.038
- CJ.Edgcombe, U. (2001). Microscopy and computational modelling to elucidate the enhancement factor for field electron emitters. *Journal of Microscopy*, 203(2), 188-194.
- Corte, F. D. (1972). *Neutron activation analysis*.
- CS Munita, M. G. (2019). *Neutron activation analysis: an overview*. Récupéré sur [https://books.google.fr/books?hl=fr&lr=&id=XJCHDwAAQBAJ&oi=fnd&pg=PA179&dq=NAA+neutron+analyse&ots=Rh4ezREfmT&sig=kSyc-vOfHrIcrVr0j1qbK3FdwKo&redir\\_esc=y#v=onepage&q=NAA%20neutron%20analyse&f=false](https://books.google.fr/books?hl=fr&lr=&id=XJCHDwAAQBAJ&oi=fnd&pg=PA179&dq=NAA+neutron+analyse&ots=Rh4ezREfmT&sig=kSyc-vOfHrIcrVr0j1qbK3FdwKo&redir_esc=y#v=onepage&q=NAA%20neutron%20analyse&f=false)
- Curie. (1903). *Recherches sur les substances radioactives*. Paris: Gauthier-Villars. Récupéré sur <https://gallica.bnf.fr/ark:/12148/btv1b8626316v/f7.image>
- De Broglie, L. (1923). Waves and Quanta. *Nature*, 112(540). doi:<https://doi.org/10.1038/112540a0>
- Delmore, A. (1991). Surface ionization : chemistry defines the physics ? *A.O. Nier symposium on inorganic mass spectrometry*.
- Diouf, M. (2012). *Synthèse de nanoparticules par ablation laser en liquide et étude de leurs propriétés*. Université Claude Bernard, Lyon I.
- Dirrengerger, P., Nicot, T., & Kunz-Iffli, J. (2018). Evaluaiton de l'exposition à l'Ammoniac : apport de la détection en temps réel. *Hygiène et sécurité au travail*(252), p. 66.
- Dodson, B. (2012). *World's smallest neutron generator – it's not just for nukes anymore*. Récupéré sur New Atlas: <https://newatlas.com/sandia-neutristor-neutron-generator-chip/23856>
- Dong. (2016). Hydrogen Sensing Characteristics from Carbon Nanotube Field Emissions. *Nanoscale*. doi:10.1039/C5NR08661B
- E. Thune D. Preusche C. Strunk H.T. Ma, A. M. (2006). *Structural determination of individual singlewall carbin nanotube by Nanoarea electron diffraction*. Netherlands.
- E.Minoux. (2006). *Sources électroniques à base de nanotubes de carbone - Application aux tubes amplificateurs hyperfréquence*.

- EDF. (2018). *Le nucléaire en chiffres*. Récupéré sur EDF: [https://www.edf.fr/groupe-edf/espaces-  
dedies/jeunes-enseignants/pour-les-jeunes/lenergie-de-a-a-z/produire-de-lelectricite/le-  
nucleaire-en-chiffres](https://www.edf.fr/groupe-edf/espaces-dedies/jeunes-enseignants/pour-les-jeunes/lenergie-de-a-a-z/produire-de-lelectricite/le-nucleaire-en-chiffres)
- Edward N. Brothers, K. N. (2005). Transverse polarizabilities of carbon nanotubes: A Hartree-Fock and density functional study. *PHYSICAL REVIEW B*, 72(033402). doi:<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.72.033402>
- Einstein. (1905). Über einen die Erzeugung und Verwandlung des Lichtes betreffenden. *Annalen der Physik*, 322(6), 132-148. doi:10.1002/andp.19053220607
- Elisabeth Crawford, R. L. (1997). A Nobel Tale of Postwar Injustice. *Physics Today*, 50(9), 26-32.
- El-Sefy, M., & Ezzeldin, M. (2019). System dynamics simulation of the thermal dynamic processes in nuclear power plants. *Nuclear Engineering and Technology*(51). doi:10.1016/j.net.2019.04.017
- Fathi, A. (2017). Magnetic field design for a Penning ion source for a 200 keV electrostatic accelerator. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 850, 1-6.
- Faw, J. K. (2002). Fundamentals of Nuclear Science and Engineering. doi:ISBN 0-8247-0834-2
- Fermi. (1947). Elementary Theory of the Chain-reacting Pile. *Science*, 105(2715), 27-32. doi:DOI: 10.1126/science.105.2715.27
- Fowler, N. (1928). Electron Emission in Intense Electric Fields. CXIX-A.
- Fox, V. (2019). *Etude par simulations des faisceaux d'ions extraits dans les tubes neutroniques*. Rapport de stage de fin d'études, Limeil Brevannes.
- FRANCHETEAU. (2023). Study of the radiative decay of <sup>252</sup>Cf spontaneous fission fragments.
- Galland, B., Courtois, B., & Martin, P. (2009). *Les détecteurs portables à photo-ionisation pour la sécurité et l'hygiène des lieux de travaux*. INRS ED 6053.
- Gardner, I. (1998). *A Review of Spallation Neutron Source Accelerators*. Récupéré sur CERN.
- Gautier, L.-A. (2016). *Synthèse de nanotubes de carbone alignés verticalement par PECVD et étude de leurs propriétés d'émission à effet de champ en configuration de structures hiérarchiques*. Université du Québec.
- Gautier, L.-A. (2016). *Synthèse de nanotubes de carbone alignés verticalement par PECVD et étude de leurs propriétés d'émission à effet de champ en configuration de structures hiérarchiques*.
- Gonzalez, F. (2021, 10). Improved Neutron Lifetime Measurement with UCN $\tau$ . *Phys. Rev. Lett.*, 162501. doi:<https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.127.162501>
- H. Furuta, H. K. (2011). Long lifetime emission from screen printing carbon nanotubes over 45,000 h at 1.27 mA/cm<sup>2</sup> with 10% duty ratio. *Diamond and Related Materials*, 35, 29-35. doi:<https://doi.org/10.1016/j.diamond.2013.03.003>
- H. Zhao, H. K. (2010). Effects of impurity on field emission of carbon nano-tubes. Récupéré sur [https://www.semanticscholar.org/paper/Effects-of-impurity-on-field-emission-of-carbon-  
Zhao-Kirkici/e458eb1fefc1aaed453f015cae999b3cd32723f5](https://www.semanticscholar.org/paper/Effects-of-impurity-on-field-emission-of-carbon-Zhao-Kirkici/e458eb1fefc1aaed453f015cae999b3cd32723f5)
- H.W. Kroto, J. H. (1985). C<sub>60</sub>: Buckminsterfullerene. *Nature*, 318.
- Hahto, S. K. (s.d.). Compact neutron generator development and applications. Récupéré sur [https://www.researchgate.net/publication/237212004\\_Compact\\_neutron\\_generator\\_devel  
opement\\_and\\_applications](https://www.researchgate.net/publication/237212004_Compact_neutron_generator_development_and_applications)
- Hameed, R. (2018). Achieving an optimum slowing-down energy distribution functions and corresponding reaction rates for the (D+3He and T+3He) fusion reactions. *TECHNOLOGIES AND MATERIALS FOR RENEWABLE ENERGY, ENVIRONMENT AND SUSTAINABILITY: TMREES18*. doi:10.1063/1.5039235
- Harry E. Martz, J. . (2021). Nuclear Techniques to Detect Explosives.

- Holland, H. D. (2009). Why the atmosphere became oxygenated: A proposal. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 73(18), 5241-5255. doi:<https://doi.org/10.1016/j.gca.2009.05.070>
- Hyunju Chang, J. D. (2001). Adsorption of NH<sub>3</sub> and NO<sub>2</sub> molecules on carbon nanotubes. doi:<https://doi.org/10.1063/1.1424069>
- IAEA. (2015, 07 31). IAEA. Récupéré sur Nuclear Data Service: <https://www-nds.iaea.org/>
- IAEA, R. T. (2012). *Neutron Generators for Analytical Purposes*. Vienna. doi:ISBN 978-92-0-125110-7
- Iijima, S. (1991). Helical microtubules of graphitic carbon. 354, 56-58.
- Itkis, M. E. (2005). Comparison of Analytical Techniques for Purity Evaluation of Single-Walled Carbon Nanotubes. *Journal of the American Chemical Society*, 127(10), 3439-3448. doi:<https://doi.org/10.1021/ja043061w>
- J. A. Young, C. W. (1970, Avril). Cosmogenic radionuclide production rates in the atmosphere. *Oceans and Atmospheres*, 2385-2390. doi: <https://doi.org/10.1029/JC075i012p02385>
- J. Hone, M. W. (1999). Thermal conductivity of single-walled carbon nanotubes. *Phys. Rev. B*, 59.
- J.Arianer. (1997). Les Sources de Particules Chargées. *Institut de Physique nucléaires*, 28(21).
- J.Hone, M. M. (2002). Thermal properties of carbon nanotubes and nanotube-based materials. *Appl. Phys.*, 7, 339-343.
- JA. Greer, M. T. (1995). Large-area pulsed laser deposition: Techniques and applications. *Journal of Vacuum Science & Technology A*, 13(1175).
- Jabeen, S. K. (2015). A Review on Polymeric Nanocomposites of Nanodiamond Carbon Nanotube, and Nanobifiller: Structure, Preparation and Properties, Polymer-Plastic Technology and Engineering. *Polymer-Plastics Technology and Engineering*, 54, 1379-1409. Récupéré sur <https://www.tandfonline.com/doi/full/10.1080/03602559.2015.1021489>
- JB Wang, Q. L. (1998). The preparation of cubic C<sub>3</sub>N<sub>4</sub> by pulsed-laser. *Chemical Journal of Chinese*, 1719-1720.
- Jean-Christophe Sublet, M. F. (2016). From cutting-edge pointwise cross-section to groupwise reaction rate: A primer. Oxfordshire. doi:10.1051/epjconf/201714602003
- JM.Bonard, F. T. (1997). Field emission properties of multiwalled carbon nanotubes. *Ultramicroscopy*, 73, 7-15.
- Joliot, & Curie. (1932). Émission de protons de grande vitesse par les substances hydrogénées sous l'influence des rayons  $\gamma$  très pénétrants. *Comptes Rendus des Séances de l'Académie des Sciences*, 194, p. 273. doi:<http://visualiseur.bnf.fr/CadresFenetre?O=NUMM-3147&l=273>
- Justin, B. (2019). Maximizing specific energy by breeding deuterium. *Nucl. Fusion*, 59. doi:10.1088/1741-4326/ab394c
- Kaskun, S., & Kayfeci, M. (2018). The synthesized nickel-doped multi-walled carbon nanotubes for hydrogen storage under moderate pressures. *Int. J. Hydrogen Energy*. doi:<https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2018.01.084>
- Keldysh. (1965). Ionization in the field of a strong electromagnetic wave. *Soviet Physics JETP*, 20(5), 1307.
- Kraus, W. (2012). *RF Ion Sources*. Max-Planck-Institut. Senec: CERN Accelerator School – Ion Sources.
- Kumar. (2010). Chemical Vapor Deposition of Carbon Nanotubes: A Review on Growth Mechanism and Mass production. *Journal of Nanoscience and Nanotechnology*, 10, 3739–3758.
- L.V. Radushkevich, V. L. (1952). About the structure of carbon formed by thermal decomposition of carbon monoxide on iron substrate. *Chim*, 26, 88-95.

- Lasse Jensen, O. H.-O. (2005). Static and Frequency-Dependent Polarizability Tensors for Carbon Nanotubes. *Physical Chemistry B*, 104(45), 10462-10466. doi:<https://doi.org/10.1021/jp994073k>
- Latham. (1995). *High Voltage Vacuum Insulation: Basic Concepts and Technological Practice*. Birmingham, UK: Academic press.
- LAUL, J. (1979). Neutron activation analysis of geological materials. *ATOMIC ENERGY REVIEW*, 173, 603-691.
- Lauret, J. (2003). *Etude des propriétés optiques des nanotubes de carbone*. thèse, Université Pierre et Marie Curie, Paris VI, France.
- Liao, Q. (2007). *High intensity, pulsed electron beam emission from carbon nanotube cathodes*. Beijing.
- Lorin X. Benedict, S. G. (1995). Static polarizabilities of single-wall carbon nanotubes. *PHYSICAL REVIEW B*, 52. doi:<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.52.8541>
- Luong. (1997). *Etude de l'émission électronique par effet de champ sur des surfaces larges en régime statique et hyperfréquence*. Paris.
- M. Mittala, A. (2014). *Carbon nanotube (CNT) gas sensors for emissions from fossil fuel burning*. doi:<https://doi.org/10.1016/j.snb.2014.05.080>
- Mahapatra, D. S. (2011). Degradation and failure of field emitting carbon nanotube arrays. *Journal of Nanoscience and Nanotechnology*, 11(5), 3911-3915. doi:<https://doi.org/10.1166/jnn.2011.3829>
- Manuelli. (2018). *Etude des mécanismes de la désorption : ionisation laser assistée par matrice*. Manuscrit de thèse. Récupéré sur <https://hal.univ-lorraine.fr/tel-01776921>
- Marc Monthieux, V. L. (2006). Who should be given the credit for the discovery of carbon nanotubes? *Carbon*, 44.
- Matea, I. (2003). *Décroissance  $\beta$  et moments magnétiques comme outils pour sonder la structure nucléaire. Etude des noyaux riches en neutrons autour de N=40*. Caen. Récupéré sur <https://theses.hal.science/tel-00004655>
- Michael A. Lieberman, A. J. (2005). *Lieberman and Lichtenberg, Principles of Plasma Discharges*. John Wiley & Sons, Inc. doi:10.1002/0471724254
- MM. Treacy, T. E. (1996). Exceptionally high Young's modulus observed for individual carbon nanotube. *Nature*, 678-680.
- Modi, N. K. (2003). Miniaturized gas ionization sensors using carbon nanotubes. *nature*, 424(6945). doi:10.1038/nature01777
- Munson. (2006). Chemical Ionization Mass Spectrometry: theory and applications. *Encyclopedia of Analytical Chemistry*. doi:10.1002/9780470027318.a6004
- Nam, J., Cho, S., Choi, Y., Ha, J., Park, J., Choe, D., & Yoo, J. (2005). Long lifetime of field emitters fabricated using carbon nanotube paste. doi:10.1109/IVNC.2005.1619601
- Nambu, Y. (1976). The Confinement of Quarks. *Scientific American*, 235(5), 48-63. Récupéré sur <https://www.jstor.org/stable/24950482>
- Nargolwalla, S. S., & Przybylowicz, E. P. (1973). *Activation analysis with neutron generators*. Récupéré sur <https://www.osti.gov/biblio/4347924>
- NIST, N. I. (2021, 10 13). *Center for Neutron Research*. Récupéré sur <https://www.ncnr.nist.gov/resources/n-lengths/>
- North Carolina School of Science and Mathematics. (2002). *Teachers' Instructional Graphs Education Resource (TIGER)*. Récupéré sur <https://www.dlt.ncssm.edu/tiger/chem2.htm>

- Oak Ridge National Laboratory. (2023, Juillet 21). *Spallation Neutron Source accelerator achieves world-record 1.7-megawatt power level to enable more scientific discoveries*. Récupéré sur ornl.gov: <https://www.ornl.gov/news/spallation-neutron-source-accelerator-achieves-world-record-17-megawatt-power-level-enable>
- Oliphant, M. H. (1934). 100 kilovolt discharges in deuterium plasmas. *Proceedings of the Royal Society A*, 692–714.
- Oliphant, M. H. (1934). Transmutation Effects Observed with Heavy Hydrogen. *Proc. R. Soc. Lond. A*, 144(853). doi:<https://doi.org/10.1098/rspa.1934.0077>
- Pablo, P. J. (1999). *Correlating the location of structural defects with the electrical failure of multiwalled carbon nanotubes*. Madrid. Récupéré sur <https://doi.org/10.1063/1.125501>
- Paschen, F. (1889). Über die zum Funkenübergang in Luft, Wasserstoff and Kohlensäure bei verschiedenen Drucken erforderliche Potentialdifferenz. *Annalen der Physik*, 273(5), 69-96. doi:10.1002/andp.18892730505
- PEDERSON, M. R., & BROUGHTON, J. Q. (1992). Nanocapillarity in fullerene tubules. 69(18). doi:0.1103/PhysRevLett.69.2689
- Pepitone, K. (2014). *Etude de la production, de la propagation et de la focalisation d'un faisceau d'électrons impulsionnel intense*. Bordeaux.
- Pougéard-Dulimbert, T. (2001). Extraction de faisceaux d'ions à partir de plasmas neutres : modélisation et simulation numérique. *Analyse numérique*. Récupéré sur <https://theses.hal.science/tel-01483017>
- Project, U. I. (s.d.). *Fusion Reaction*. Récupéré sur USITER: [www.usiter.org](http://www.usiter.org)
- Q.H.Wang, T. R. (1997, juin). Field emission from nanotube bundle emitters at low fields. *Applied Physics Letters*, 70(24), 3308-3310.
- Q.Han, H. (2011). *Elastic Properties of Carbon Nanotubes*.
- R. L. Fink, J. N. (2009). Carbon Nanotube Based Deuterium Ion Source for Improved Neutron Generators. *American Institute of Physics*, 1099(1), 1099. doi:<http://aip.scitation.org/toc/apc/1099/1>
- R.L. Fleischer, P. B. (1975). *Nuclear Tracks in Solids : Principles and Applications*. Berkeley. Récupéré sur ISBN 978-0-520-02665-0
- Radauscher, E. J. (2015). Chemical Ionization Mass Spectrometry Using Carbon Nanotube Field Emission Electron Sources. *Journal of The American Society for Mass Spectrometry*, 26, 1903-1910. Récupéré sur <https://link.springer.com/article/10.1007/s13361-015-1212-0>
- Richard E. Faw, J. S. (2003). Radiation Sources. *Encyclopedia of Physical Science and Technology (Third Edition)*, 613-631. doi:<https://doi.org/10.1016/B0-12-227410-5/00636-0>
- Rivard, E. (2019). Hydrogen Storage for Mobility: A Review. doi:<https://doi.org/10.3390/ma12121973>
- Robouch, B. (1993). Gamma diagnostics of thermonuclear plasma using D(d,gamma)4He reaction. doi:ETDE-IT-94-23 IAEA
- Röntgen. (1895). Ueber eine neue Art von Strahlen. *Société physico-médicale de Würzburg*. Récupéré sur <https://doi.org/10.1002/andp.18983000103>
- Russell, G. J. (1990). Spallation Physics - An Overview. *International Collaboration on Advanced Neutron Sources*.
- Rutherford. (1911). The Scattering of  $\alpha$  and  $\beta$  Particles by Matter and the Structure of the Atom. *Phil.Mag.Ser.6*, 21, 669-688. doi:10.1080/14786440508637080

- Rutherford, E. (1900). XI. Radioactivity produced in substances by the action of thorium compounds. *The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science*, 49(297), 161-192. Récupéré sur <https://doi.org/10.1080/14786440009463832>
- S. C. Lim, H. J. (2001). *Field-emission properties of vertically aligned carbonnanotube rray dependent on gas exposures and growth conditions*. *Journal of Vacuum Science & Technology A*. doi:<https://doi.org/10.1116/1.1372915>
- S. Iijima. (1993). Single-shell carbon nanotubes of 1-nm diameter. *Nature*, 363(6430), 603-605.
- Sabault, L. (2016). *Cathode commutable à nanotubes de carbone pour tube à rayons X*. Université Paris-Saclay, Micro et nanotechnologies/Microélectronique, Paris.
- Sabaut, L. (2016). *Cathode commutable à nanotubes de carbone pour tube à rayons X*. Université Paris-Saclay. Récupéré sur <https://pastel.archives-ouvertes.fr/tel-01505076>
- Saito, K., & Thomas, A. W. (1995). Variations of hadron masses and matter properties in dense nuclear matter. *Phys. Rev. C*, 2757. doi:<https://journals.aps.org/prc/abstract/10.1103/PhysRevC.51.2757>
- Schottky. (1923, Decembre). Über kalte und warme Elektronenentladungen. *Zeitschrift für Physik volume, 14*.
- Scrivens. (2015, 09). *Ion Source and LEBT*. Récupéré sur The CERN Accelerator School: <https://cas.web.cern.ch/sites/default/files/lectures/geneva-2015/scrivens.pdf>
- SFEN. (2023, decembre 21). *RGN*. Récupéré sur sfen: <https://www.sfen.org/rgn/chine-le-demonstrateur-de-reacteur-a-haute-temperature-est-en-service/>
- Shaw, J. L., & Hsu, D. S. (2017). Hydrogen ion production using carbon nanotube field emitter arrays.
- Shetty. (2013). *Study of Particle Transport in a High Power Spallation Target for an Accelerator-Driven*. Ph.D. thesis, Faculty of Georesources and Materials Engineering ;RWTH Aachen University.
- Shimoi, N. (2019). *Field-emission durability employing highly crystalline single-walled carbon nanotubes in a low vacuum with activated gas*.
- Shuhei Inoue, T. K. (2018). *Effects of physical and chemical adsorption on the electric conductance of carbon nanotube films*.
- Sifi. (2008). *Ionisation résonante par faisceaux laser : Application aux sources d'ions et à l'étude de la structure des noyaux radioactifs de tellure*. Manuscrit de thèse. Récupéré sur <https://theses.hal.science/tel-00252001>
- Smith, G. (1997). J. J. Thomson and The Electron: 1897–1899 An Introduction. *Chem. Educator*, 2, 1-42. doi:10.1007/s00897970149a
- Sodern. (1989). *France Brevet n° 0362945*.
- Sodern. (2022, Juin). Récupéré sur sodern: <https://sodern.com/fr/dossier-de-presse-60-ans-de-ruptures/>
- Sodern. (2024). Récupéré sur Malvern Panalytical: <https://www.malvernpanalytical.com/fr/support/product-support/cna-range/cna-pentose-cement>
- Song, X. (2009). Novel planar field emission of ultra-thin individual carbon nanotubes. doi:10.1088/0957-4484/20/40/405208
- Steichen, V. (2023). *Développement d'un analyseur en énergie pour la caractérisation des hautes atmosphères neutres et ionisées terrestre et planétaires*. Thèse de doctorat de planétologie.
- Stott, G. M. (2012). *Fusion*. Academic Press. doi:<https://doi.org/10.1016/C2009-0-64568-2>
- Strassmann, O. H. (1939). Über den Nachweis und das Verhalten der bei der Bestrahlung des Urans mittels Neutronen entstehenden Erdalkalimetalle. *Naturwissenschaften*, 27(1), 11-15.

- Sy. (2013). *Advanced Penning-type ion source development and passive beam focusing techniques for an associated particle imaging neutron generator with enhanced spatial resolution.*
- Sy, A. V. (2013). *Advanced Penning-type ion source development and passive beam focusing techniques for an associated particle imaging neutron generator with enhanced spatial resolution.* University of California, Berkeley.
- T. Ji, Y. M. (2016). Thermal conducting properties of aligned carbon nanotubes and their polymer composites. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, 91, 351-369.
- Takuya Kokabu, K. T. (2017). *transport phenomena of electrons at the carbon nanotube interface with molecular adsorption.* Récupéré sur <https://doi-org.accesdistant.sorbonne-universite.fr/10.1063/1.4992090>
- TAWARA, H. (1992). Cross-section data for collisions of electrons with hydrocarbon molecules. *Atomic and plasma-material interaction data for fusion - journal Nuclear Fusion*, 2. Récupéré sur STI/PUB/23/APID/2
- Tessier. (2006). *Procédés plasmas à faisceau d'ions.* Institut des Matériaux Jean Rouxel, CNRS, Groupe des plasmas et des couches minces.
- Turekian, K., & Graustein, W. (2003). *Treatise on Geochemistry* (Vol. 4). Récupéré sur <https://doi.org/10.1016/B0-08-043751-6/04042-1>
- US DEpartemeten of Energy. (s.d.). *NNDC.* Récupéré sur <https://www.nndc.bnl.gov/>
- V. Nesvizhevsky, A. Y. (2013). Quantum levitation of nanoparticles seen with ultracold neutrons. *Crystallography Reports*, 58(5). doi:0.1134/S1063774513050088
- W. M. Brobeck, E. O. (1947). Initial Performance of the 184- Inch Cyclotron of the University of California. *Phys Rev*, 71, 449-450.
- W.Wood. (1897). A New Form of Cathode Discharge and the Production of X together with some notes on diffraction. V(1).
- Wagemans, C. (1991). *The Nuclear Fission Process.* CRC Press.
- Wang. (2023, Septembre 27). *LLNL NIF Plans for Higher Laser Power and a Roadmap to Over 10X Fusion Gain.* Récupéré sur .nextbigfuture: <https://www.nextbigfuture.com/2023/09/llnl-nif-plans-for-higher-laser-power-and-a-roadmap-to-over-10x-fusion-gain.html>
- WANG, F. (2007). Electron Momentum Spectroscopy and Its Applications to Molecules of Biological Interest. *AIP Conference Proceedings*, 54-81. doi:10.1063/1.2827040
- Wang, Z. (2012). A Computerized System for the Measurement of Nanomaterial Field Emission and Ionization. *Plasma Science and Technology*, 14(9). doi:DOI: 10.1088/1009-0630/14/9/09
- Weber. (1968). Une série précambrienne du Gabon : le Francevillien. Sédimentologie, géochimie, relations avec les gîtes minéraux associés. *Sciences Géologiques, bulletins et mémoires.* Récupéré sur [https://www.persee.fr/doc/sgeol\\_0080-9020\\_1968\\_mon\\_28\\_1](https://www.persee.fr/doc/sgeol_0080-9020_1968_mon_28_1)
- Wei, Y. (2001). *Stability of carbon nanotubes under electric field studied by scanning electron microscopy.*
- wikipedia. (2016, May). *File:Proton-proton reaction chain.svg.* Récupéré sur Wikimedia Commons: [https://en.m.wikipedia.org/wiki/File:Proton-proton\\_reaction\\_chain.svg](https://en.m.wikipedia.org/wiki/File:Proton-proton_reaction_chain.svg)
- X.Q.Wang, P. Y. (2004). Model calculation for the field enhancement factor of carbon nanotube . *Journal of Applied Physics*, 96.
- Y. Zhang, Y. T. (2019). Electron Emission and Structure Stability of Carbon Nanotube Cold Cathode Driven by Millisecond Pulsed Voltage. *Vacuum.* doi:<https://doi.org/10.1016/j.vacuum.2019.109071>.

- Y. Zuo, Y. R. (2013). *Enhanced field emission and hysteresis characteristics of aligned carbon nanotubes with Ti decoration*. *Organic Electronics*. doi:10.1016/j.orgel.2013.05.027
- Y.Saito, K. R. (1999, mai). Field emission from carbon nanotubes and its application to cathode ray tube lighting elements. *Applied Surface Science*, 146, 305-311.
- Y.Saito, S. (2000). Field emission from carbon nanotubes and its application to electron sources. *Carbon*, 38, 169-182.
- Yaghoobi, P. (2009). High subthreshold field-emission current due to Hydrogen adsorption in single-walled Carbon nanotubes: a first-principles study. *Applied Physics Letters*, 95(26), 262102-262102-3. doi:10.1063/1.3275785
- Yuan Cheng, O. Z. (2003). Electron field emission from carbon nanotubes. *Comptes Rendus Physique*, 4(9), 1021-1033. doi:https://doi.org/10.1016/S1631-0705(03)00103-8
- Z.Wang. (2008). *Propriétés électro-mécaniques des Nanotubes de Carbone*.
- Zhao. (2017). Low pressure hydrogen sensing based on carbon nanotube field emission: Mechanism of atomic adsorption induced work function effects. doi:10.1016/j.carbon.2017.09.032
- Züttel, A. (2004). Hydrogen storage methods. *Naturwissenschaften*. doi:10.1007/s00114-004-0516-x

Figure I-1 : Section efficace d'activation en fonction de l'énergie du neutron.....	8
Figure I-2 : Diffusion élastique (CANDU Fundamentals, 2004) .....	10
Figure I-3 : Diffusion inélastique (CANDU Fundamentals, 2004) .....	12
Figure I-4 : Capture radiative (n, $\gamma$ ) (CANDU Fundamentals, 2004) .....	13
Figure I-5 : Transmutation (n,p) de l'équation (I-13) (CANDU Fundamentals, 2004) .....	13
Figure I-6 : Transmutation (n, $\alpha$ ) de l'équation (I-14) (CANDU Fundamentals, 2004) .....	14
Figure I-7 : Transmutation (n,2n) .....	14
Figure I-8 : Chronologie de la fission nucléaire (FRANCHETEAU, 2023).....	16
Figure I-9 : Fission induite (n,2n) (CANDU Fundamentals, 2004).....	17
Figure I-10 : Section efficace de capture neutronique et de fission de l' $^{235}\text{U}$ en fonction de l'énergie du neutron incident (IAEA, 2015).....	17
Figure I-11 : Spallation (IAEA, 2015).....	19
Figure I-12 : Réaction de fusion (Project).....	20
Figure I-13 : Relation entre l'énergie de liaison nucléaire d'un isotope et sa masse atomique (North Carolina School of Science and Mathematics, 2002).....	21
Figure I-14 : Spectre d'émission neutronique de réacteur à fusion (noir) et à fission (vert, bleu et rouge) (Jean-Christophe Sublet, 2016) .....	22
Figure I-15 : Spectre d'émission neutronique de la spallation et de la fission (Shetty, 2013) .....	23
Figure I-16 : Schéma de principe d'un réacteur à eau pressurisée. (El-Sefy & Ezzeldin, 2019) .....	26
Figure I-17 : Chaîne de réaction proton-proton (wikipedia, 2016) .....	28
Figure I-18 : Schéma du Tokamak West du CEA (CEA, 2018) .....	29
Figure I-19 : Les quatre étapes du confinement inertiel : chauffage laser de la couche externe (a), ablation de la couche externe et compression de la capsule (b), le noyau atteint une densité et une température suffisante pour l'inflammation (c), propagation de la réaction de fusion (d) (Stott, 2012) .....	30
Figure II-1 : Spectres d'énergie des neutrons de fusion pour différentes réactions impliquant soit du deutérium d, soit du tritium t : d+d, d+t et t+t (Hahto) .....	34
Figure II-2 : Diagramme d'un tube à neutrons scellé .....	35
Figure II-3 : Schéma générale de pulse d'un tube neutronique .....	36
Figure II-4 : Schéma générale de pulse d'un tube neutronique .....	37
Figure II-5 : Analyseur en ligne Ciment (Sodern, Malvern Panalytical, 2024).....	39
Figure II-6 : Diagraphie (Sodern, 2024) .....	39
Figure II-7 : Diagramme des étapes d'absorption de l'hydrogène (Boulila, 2021).....	42
Figure II-8 : Schéma d'une ionisation électronique (e, 2e) (Cappello, 1989) .....	44
Figure II-9 : Sections efficaces partielles d'ionisation de CH <sub>4</sub> due à l'impact électronique (TAWARA, 1992).....	45
Figure II-10 : Courbes de Paschen (Michael A. Lieberman, 2005).....	47
Figure II-11 : Schéma général d'une source d'ions (Scrivens, 2015) .....	50
Figure II-12 : Trois méthodes différentes de couplage RF (Kraus, 2012) .....	51
Figure II-13 : Schéma simplifié d'une source d'ions Penning (Fox, 2019) .....	53
Figure II-14 : Schéma simplifié de l'extraction du plasma dans la source d'ions (Pougeard-Dulimbert, 2001).....	54
Figure II-15 : Sections efficaces de fusion D-T et T-T.....	55
Figure II-16 : Rendement neutronique des réactions de fusion D-T et T-T (Sy A. V., 2013) .....	56
Figure II-17 : Schéma d'une cible neutronigène (CEA Valduc) .....	56

Figure II-18 : Tube Sodilog.....	58
Figure II-19 : Mesures du courant dans la source d'ions en jaune lors d'une impulsion de haute tension (en rose) pour un tube à neutrons Sodilog .....	59
Figure III-1 : Puits de potentiel de l'attraction d'un électron par le noyau (J.Arianer, 1997) .....	61
Figure III-2 : Schéma d'une barrière de potentiel entre un métal et le vide (Luong, 1997).....	64
Figure III-3 : Image MEB d'une cathode Spindt.....	67
Figure III-4 : Image Cerenkov de tir avec une cathode en velours (Pepitone, 2014) .....	67
Figure III-5 : Représentation d'une molécule de fullerène C60.....	67
Figure III-6 : Illustration des 3 types de CNT avec en gris l'hélice autour du nanotube (C. Thomsen, 1970) .....	69
Figure III-7 : Représentation schématique de nanotubes MWCNT .....	69
Figure III-8 : Forme idéale des orbitales hybrides sp, sp <sup>2</sup> et sp <sup>3</sup> (Castro, 2009) .....	70
Figure III-9 : Formation des CNT par CVD (Kumar, 2010) .....	72
Figure III-10 : schémas illustrent les différentes géométries (Yuan Cheng, 2003).....	73
Figure III-11 : Cathode à grille enterrée .....	75
Figure III-12 : Image MEB de la cathode en nanotubes .....	76
Figure III-13 : représentation schématique d'INEA avec la trajectoire des ions (Steichen, 2023).....	76
Figure III-14 : Schéma du circuit d'extraction du courant ionique émis par les CNT (R. L. Fink, 2009). 77	
Figure III-15 : Courbe du courant d'ionisation en fonction de la tension pour trois pressions différentes (Shaw & Hsu, 2017) .....	78
Figure III-16 : Comparaison de l'émission de champs électronique (FE) face à l'ionisation (FI) des CNT (Wang Z. , 2012) .....	79
Figure IV-1 : Photographie de l'échantillon SOD20-04.....	82
Figure IV-2 : Photographie des lignes de courant de l'échantillon 1019-SOD2 .....	82
Figure IV-3 : Photographie montrant la croissance de CNT dans un trou de l'échantillon 1018-SOD1	82
Figure IV-4: Image MEB à 15 keV et grossissement × 100 .....	83
Figure IV-5 : Image MEB à 15 keV et grossissement × 1,5k.....	83
Figure IV-6 : Image MEB à 5 keV et grandissement × 1k.....	83
Figure IV-7 : Courbes I-V en fonction du taux d'impureté de l'échantillon (de 100% à 0 %) (H. Zhao, 2010).....	84
Figure IV-8 : Image Sonde EDX au bord des nanotubes .....	84
Figure IV-9 : Spectre EDS .....	84
Figure IV-10 : Visualisation du montage via CST Studio .....	85
Figure IV-11 : Schéma électrique du banc d'essais Sodern.....	86
Figure IV-12 : Augmentation de la tension par palier de 320 à 600 V et enregistrement des courants à l'Anode et à la Cathode .....	87
Figure IV-13 : Augmentation de la tension par palier de 320 à 100 V et enregistrement des courants à l'Anode et à la Cathode .....	88
Figure IV-14 : Différents paramètres utilisés lors d'un cycle de tension.....	89
Figure IV-15 : Phase de vieillissement .....	90
Figure IV-16 : Courbe de la tension et du courant en fonction du temps lors d'un contact entre l'anode et la cathode pour l'échantillon SOD20-04 .....	91
Figure IV-17 : Photographies de l'impact sur l'anode et sur la cathode .....	91
Figure IV-18 : Courbe I-E en fonction de la distance inter-électrode pour l'échantillon SOD20-01 .....	92
Figure IV-19 : Courbe I-E en fonction de la distance inter-électrode avec une marge de 0,01 mm .....	92

Figure IV-20 : Courbe I-E avec variation de la distance inter-électrode pour l'échantillon S02-R210616-1.....	93
Figure IV-21 : Émission continue à pression constante de $1E-7$ Barr pendant 120h .....	94
Figure IV-22 : Émission continue avec une variation de la pression au cours de la journée .....	94
Figure IV-23 : Courant et Tension en mode pulsée de l'échantillon SOD20-02 (Test 56).....	96
Figure IV-24 : Courant émis en fonction du champ électrique avec mise en évidence de la différence de courant en montée et en descente lors de 12 cycles.....	98
Figure IV-25 : Courant et Tension en mode pulsée .....	99
Figure IV-26 : Courbes de Paschen .....	101
Figure IV-27 : Variation du courant en fonction de la pression en $H_2$ par Lucie Sabaut (Sabault, 2016) .....	103
Figure IV-28 : Variation du courant en fonction de la pression en $H_2$ .....	103
Figure IV-29 : Courant en fonction de la pression $H_2$ en mode pulsée .....	103
Figure IV-30 : Courbes I-E en fonction de la pression en $H_2$ .....	104
Figure IV-31 : Augmentation par palier de la tension pour différentes pressions d' $H_2$ .....	105
Figure IV-32 : Courbe I-E après mise sous gaz de $H_2$ .....	106
Figure IV-33 : Comparaison des courants d'émission pour 5 échantillons à $1\ 100$ V/mm .....	107
Figure V-1 : Représentation schématisée d'une source d'ions Penning .....	112
Figure V-2 : Domaine et Solveurs disponibles sur CST .....	113
Figure V-3 : Convergence du solveur électrostatique .....	115
Figure V-4 : Paramètre de la dispersion angulaire .....	117
Figure V-5 : Schéma de la production d'électrons secondaires .....	118
Figure V-6 : Section efficace de la réaction $e^- + H_2 \rightarrow H_2^+ + 2 e^-$ intégré sur CST-.....	121
Figure V-7 : Schéma de la source d'ions actuelle et de la source .....	122
Figure V-8 : Champ magnétique axial pour un champ rémanent de $1,75$ T .....	125
Figure V-9 : Champ magnétique selon X pour un champ rémanent de $1,75$ T à $Z= 8,24$ mm (gauche) et $Z= 12$ mm (droite).....	125
Figure V-10 : Densité de courant à $1$ mm des CNT pour une source sans grille dans le plan XY .....	125
Figure V-11 : Schéma théorique de la source d'électrons .....	126
Figure V-12 : Simulation des CNT et de la trajectoire des électrons dans une configuration plan-plan .....	127
Figure V-13 : Courbe I-E comparant les valeurs de simulations aux expériences.....	128
Figure V-14 : Simulation des grilles avec une section ronde (a) ou carré (b).....	128
Figure V-15 : Tableau et schéma récapitulatif de la géométrie des grilles .....	129
Figure V-16 : Visualisation de la grille par les électrons émis par les CNT .....	129
Figure V-17 : Décalage entre les deux grilles .....	129
Figure V-18 : Pourcentage de particules interagissant en fonction du temps de simulation .....	130
Figure V-19 : Schéma de la source d'ions avant l'optimisation du positionnement des éléments ....	130
Figure V-20 : Alignement de la source d'électrons avec le plateau du champ magnétique .....	131
Figure V-21 : Alignement du centre de l'anode avec la fin du plateau du champ magnétique.....	132
Figure V-22 : Corrélation entre les paramètres de champs électromagnétiques et l'énergie d'entrée des électrons dans l'espace d'ionisation .....	133
Figure V-23 : Visualisation des champs électriques .....	134
Figure V-24 : Cartographie du pourcentage de particules interagissant en fonction de l'aimantation et de la tension à l'anode .....	134

Figure V-25 : Cartographie du pourcentage de particules interagissant en fonction de l'aimantation et de la tension a l'anode .....	135
Figure V-26 : Trajectoires des électrons dans la source d'ions .....	136
Figure VI-1: Architecture simplifié de la maquette SI CNT qui sera testée avec le banc EPSILON.....	140
Figure VI-2 : Échantillon de CNT .....	141
Figure VI-3: Configuration possible pour le sous-ensemble CNT équipé .....	141
Figure VI-4 : Géométrie du nouvel aimant permanent et sa modélisation dans CST .....	142
Figure VI-5 : Cathode extractrice.....	143
Figure VI-6 : Vue 3D de l'ensemble Support Source d'ions équipé.....	144
Figure VI-7 : Interfaces électriques de la SI CNT.....	144
Figure VI-8 : Configurations possibles pour la disposition des interfaces électriques.....	145
Figure VI-9 : Vue sagittale de la maquette SI CNT.....	147
Figure VI-10 : Vue 3D éclatée de la maquette SI CNT .....	147
Figure VI-11 : Cage aimant assemblée .....	147
Figure VI-12 : Anode assemblée.....	147
Figure VI-13 : Soudure cage aimant .....	148
Figure VI-14 : Soudure Grille .....	148
Figure VI-15 : Vue 3D du banc EPSILON .....	149
Figure VI-16 : Schéma électrique simplifié pour la Faraday Cup.....	150
Figure VI-17 : Appareils de mesure et d'alimentation de la SI CNT. La bouteille de gaz est également visible en bas à droite.....	151
Figure VI-18 : Éléments individuels de la SI CNT avant montage .....	152
Figure VI-19 : Scotch Kapton entre l'Anode et G2.....	153
Figure VI-20 : SI CNT sur le porte échantillon.....	153
Figure VI-21 : Plasma d'azote de la SI CNT face à la Faraday Cup .....	153
Figure VI-22 : Paramètres des séquences impulsions répétées « C/O ».....	154
Figure VI-23 : Impulsions de la SI actuelle en mode C/O (en bleu, tension de l'Anode, en orange, courant de décharge de la SI et en gris, courant ionique collecté par la Faraday cup).....	155
Figure VI-24 : Courant Plateau et temps de retard de la SI sans l'utilisation des CNT.....	156
Figure VI-25 : Courant SI total de la SI sans l'utilisation des CNT.....	156
Figure VI-26 : Pulse ionique de la SI sans l'utilisation des CNT à différentes pressions.....	157
Figure VI-27 : Histogrammes du temps de retard pour la SI sans l'utilisation des CNT à plusieurs pressions.....	158
Figure VI-28 : Comparaison courant d'émission des échantillons de CNT .....	159
Figure VI-29 : Courant Plateau et temps de retard de la SI sans l'utilisation des CNT.....	160
Figure VI-30 : Histogrammes du temps de retard pour la SI CNT continu à plusieurs pressions.....	161
Figure VI-31 : Comparaison des courants plateau moyen .....	162
Figure VI-32 : Comparaison des temps de retard à l'amorçage.....	163
Figure VI-33 : Comparaison des courants ioniques crêtes collectés par la Faraday cup .....	163
Figure VI-34 : Comparaison des Jitter (en $\mu$ s) .....	164
Figure VI-35 : Temps de retard en fonction du courant des CNT.....	165
Figure VI-36 : photographies des CNT après utilisation .....	166
Figure VI-37 : Échantillon de CNT avec un zoom sur le motif de grille et la métallisation.....	166
Figure VI-39 : pollution des CNT sur les grilles .....	167

Tableau I-1 : Plages énergétiques des neutrons .....	7
Tableau I-2 : Sections efficaces de neutrons (NIST, 2021) .....	8
Tableau I-3 : Tableau récapitulatif des caractéristiques du neutron .....	9
Tableau I-4 : Comparatif des méthodes d'émissions neutroniques.....	21
Tableau I-5 : Paramètres des réacteurs nucléaires .....	25
<i>Tableau I-6 : Paramètres de source de spallation .....</i>	<i>27</i>
Tableau II-7 : Comparaison des sources neutroniques scellées.....	57
Tableau II-8 : Mode d'émission pulsée du tube Sodilog .....	59
Tableau II-9 : Spécification d'amélioration du tube Sodilog .....	60
Tableau III-10 : Comparatif des processus d'émission électronique.....	66
Tableau III-11 : Comparatif des processus d'émission électronique pour l'application d'une source d'ions .....	66
Tableau IV-1 : Paramètres et spécifications du tube neutronique .....	81
Tableau IV-2 : Valeurs typiques de paramétrage d'une phase de vieillissement .....	89
Tableau IV-3 : Caractéristiques des points de fonctionnement du tube neutronique .....	95
Tableau IV-4 : Synthèse des essais sur les CNT .....	109
Tableau V-1 : Paramètres des matériaux intégrés à noter simulation.....	123
Tableau V-2 : Paramètres du gaz.....	123
Tableau V-3 : Pourcentage de particules ayant interagi en fonction de l'aimantation, du positionnement de l'anode et de la tension à l'anode .....	132
Tableau V-4 : Comparaison des deux points de simulations.....	135
Tableau VI-1 : Paramètres géométriques de la source d'électrons .....	141
Tableau VI-2 : Nomenclature de la maquette SI CNT.....	146
Tableau VI-3 : Paramètre de la SI actuelle .....	154

## VIII. ANNEXES

## A. APPLICATIONS DES TUBES NEUTRONIQUES

Tableau récapitulatif des applications utilisant une source neutronique (IAEA R. T., 2012)

Field	Category	Energy Required	Existing Applications
Security	Explosives detection	14 MeV	Cargo/luggage inspection, Suspicious objects C,O,N
	Chemical weapon detection	14 MeV, metals might be possible with 2.5 MeV	N, P, CW inspections
	Contraband detection	14 MeV	Narcotics, C,O,N
Safeguards	Nuclear material detection	2.5 MeV	Fission product nuclides
Art and Archaeology	Artefacts	2.5 MeV, 14 MeV thermalized	Major components
	Archaeological objects	2.5 MeV, 14 MeV thermalized	Major components
Industrial	on-line analyzers	2.5 MeV, 14 MeV	Cement process monitoring Coal and mining industries Ca, Si, Fe, Al
	metal cleanliness	14 MeV	Oxygen in Mg, Al, Steel
	raw materials	2.5 MeV, thermalized and not thermalized	Purity, contaminants
	Al based catalysts	14 MeV	F
	Energy production	thermalized	H in fuel cell technology
Research	Cross-section 2.5 MeV reactions	2.5 MeV	

Field	Category	Energy Required	Existing Applications
Educational	NAA training	2.5 MeV, 14 MeV	
	Nuclear parameter training	2.5 MeV, 14 MeV	
	Inelastic neutron scattering		
	Imaging, Radiography		
Medical	body screening	pulsed 14 MeV	C, O, N, Ca, Na, Cl, P
Nutrition	protein content of food	14 MeV	N
	animal fodder	2.5 MeV, thermalized	Trace elements
Environmental	Recycled material	2.5 MeV thermalized	Cd, Hg, Br, Cl
	Waste material	2.5 MeV thermalized	
	Radiography	2.5 MeV	Water content of plants (in vivo)
	Pesticides	2.5 MeV	Halogens (Br, Cl)
		14 MeV	Halogens (F)
Geological	on-line analyzers		Ash value of coal, Si, Al, C, H, Fe, Ca, S, calorific value
	exploration		Downhole inspection/oil, H

## B. DÉMONSTRATION DE LA LOI DE FOWLER-NORDHEIM

La fonction de distribution de Fermi-Dirac, dans l'hypothèse d'un gaz d'électrons, peut être décrite par la formule suivante :

$$f(E_x, E_F, T) = \left( 1 + \exp\left(\frac{E_x - E_F}{kT}\right) \right)^{-1} \quad (\text{VIII-1})$$

Avec :  $E_x$  l'énergie de l'orbitale  $x$  ;  
 $E_F$  niveau de Fermi ;  
 $T$  la température.

Pour une surface plane, la probabilité d'un électron de traverser la barrière de potentiel dépend que de son énergie à la surface selon  $x$ . Sa vitesse vaut  $v_x = \frac{\hbar k_x}{m}$  avec  $k_x$  le vecteur d'onde selon  $x$  et  $m$  sa masse.

Grâce à la loi d'Ohm locale ( $j = nev$ ), on obtient :

$$dJ = ev_x dn(k_x) D(E_x) \quad (\text{VIII-2})$$

Avec :  $dn(k_x) = g(\vec{k}) dk_x \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} f(E_x, E_F, T) dk_y dk_z$

$g(\vec{k}) = \frac{2}{(2\pi)^3}$  la densité d'états dans l'espace des  $\vec{k}$  par unité de volume

En intégrant :  $J = 2e \int_{\vec{k}} f(E_x, E_F, T) D(E_x) v_x \frac{d^3\vec{k}}{(2\pi)^3}$

Dans le vide, la barrière de potentiel prend une forme triangulaire :  $V(x) = E_v - eFx$

En prenant en compte la charge d'espace, la barrière de potentiel s'arrondit à son sommet, le potentiel  $a$  donc la forme suivante :

$$V(x) = E_v - eFx - \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{e^2}{4x} \quad (\text{VIII-3})$$

Pour cette forme particulière de barrière, il faut calculer le facteur de transmission en utilisant l'équation de Schrödinger  $H|\psi\rangle = E|\psi\rangle$  en raccordant les fonctions d'onde. En utilisant l'approximation de Wentzel-Kramers-Brillouin (WKB), nous pouvons développer au premier ordre la fonction d'onde pour un système quantique donné. On obtient la probabilité de transmission à travers la barrière de potentiel, soit :

$$D_{WKB}(E_x) = \exp\left(-2 \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}} \int_{x_1}^{x_2} \sqrt{V(x) - E_x} dx\right) \quad (\text{VIII-4})$$

Avec :  $E_x = \frac{\hbar^2 k_x^2}{2m}$

$V(x_{1,2}) = E_x$

Fowler et Nordheim ont en 1928 réalisé un développement limité de cette expression  $F$  en ajoutant le travail de sortie  $\phi$  et en émettant l'hypothèse qu'il soit constant sur la surface émettrice et indépendant du champ électrique (Fowler, 1928) :

$$D_{WKB}(E_x) = \exp\left(-\frac{4\phi^{1,5}}{3eF} \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}} v(y)\right) \exp\left(\sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}} \frac{2\phi^{0,5} t(y)}{eF} (E_x - E_F)\right) \quad (\text{VIII-5})$$

En intégrant  $dJ$  avec l'approximation WKB, on obtient l'expression de la densité de courant émise en fonction du champ appliqué à  $T = 300$  K :

$$J_{F-N}(F) = \frac{e}{4(2\pi^2\hbar\phi t^2(y))} F^2 \exp\left(-\frac{4\sqrt{2m}\nu(y)\phi^{1,5}}{3\hbar eF}\right) \quad (\text{VIII-6})$$

Via la fonction de  $y$ , la quantité qui traduit l'abaissement du travail de sortie dépendant de la charge image, on obtient les fonctions dites elliptiques de Nordheim  $\nu$  et  $t$  :

$$y = \frac{\Delta\phi}{\phi} = \frac{\sqrt{\frac{e^3 F}{4\pi\epsilon_0}}}{\phi} \quad (\text{VIII-7})$$

$$\begin{cases} \nu(y) \approx 0,96 - y^2 \\ t(y) \approx 1,049 \end{cases} \quad (\text{VIII-8})$$

On obtient l'équation de Fowler-Nordheim qui est l'expression de la densité du courant émise en fonction du champ électrique :

$$J_{F-N}(F) = 1,42 \times 10^{-6} \frac{F^2}{\phi} \exp\left(\frac{10,4}{\sqrt{\phi}}\right) \exp\left(-6,56 \times 10^9 \frac{\phi^{3/2}}{F}\right) \quad (\text{VIII-9})$$

- Avec :  $F$  le champ électrique en  $\text{V}\cdot\text{m}^{-1}$  ;
- $\phi$  le travail de sortie en eV ;
- $J$  la densité de courant en  $\text{A}\cdot\text{m}^{-2}$ .

On obtient en multipliant  $J$  par la dimension d'une surface  $A$ , le courant émis par émission de champ  $I$ . Théoriquement  $A$  représente uniquement l'aire de la zone émissive dans une surface plane. En pratique, pour les nanotubes de carbone, ce paramètre qui devrait être relié à la surface de l'extrémité des nanotubes, n'est pas pris en compte car il n'est pas significatif.

### VIII.B.1 LA CHARGE D'IMAGE

L'émission de champ profite systématiquement de l'effet Schottky qui régit l'émission des électrons. Lors de son émission, l'électron subit une force de rétention dans le matériau équivalente à l'apparition d'une charge positive : la charge d'image. Cette charge va modifier la forme de la barrière de potentiel en abaissant la hauteur et en réduisant l'épaisseur de la barrière par rapport à sa forme triangulaire que l'on retrouve dans la Figure VIII-1.

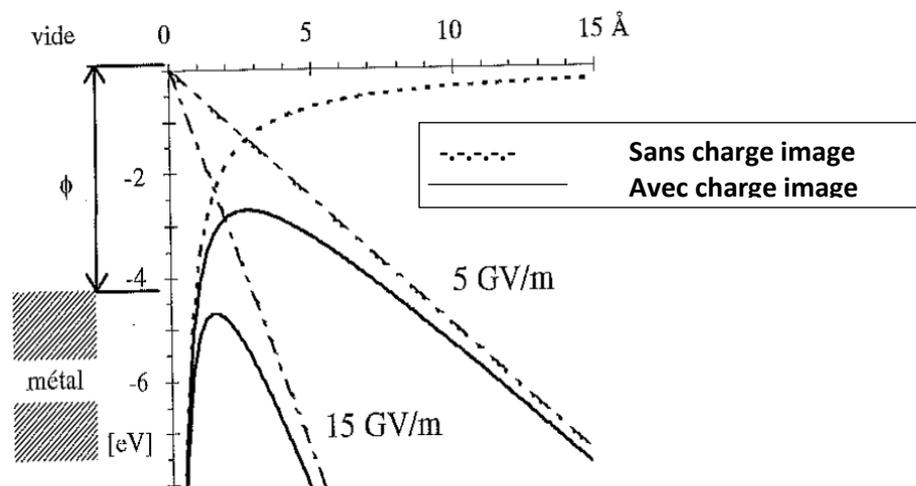


Figure VIII-1 : Barrière de potentiel corrigée (Luong, 1997)

### VIII.B.2 *DISPERSION ÉNERGÉTIQUE*

Contrairement à l'effet thermoïonique, l'émission froide possède une distribution énergétique étroite où seuls les électrons proches du niveau de Fermi sont émis (de 0,11 à 0,5 eV). La distribution est centrée au niveau de Fermi avec une décroissance exponentielle de part et d'autre.

L'émission de champ dans les métaux purs se produit dans des champs électriques élevés : les gradients sont généralement supérieurs au gigavolt par mètre et dépendent fortement du travail de sortie. Alors que les sources d'électrons reposant sur le principe de l'émission de champ ont un certain nombre d'applications, l'émission de champ est le plus souvent une source primaire indésirable de rupture du vide et de phénomènes de décharge électrique, que les ingénieurs s'efforcent d'éviter.

### C. CHIRALITÉ DES CNT

La chiralité peut être définie par un couple de nombre  $(n, m)$  caractérisant le nombre de vecteurs unitaires  $\vec{a}$  nécessaires pour former le vecteur caractéristique de l'enroulement. Pour calculer la chiralité des nanotubes, nous nous basons sur du graphène, un plan en deux dimensions composé d'un réseau hexagonal décrit à partir de deux vecteurs de base :  $\vec{a}_1$  et  $\vec{a}_2$ .

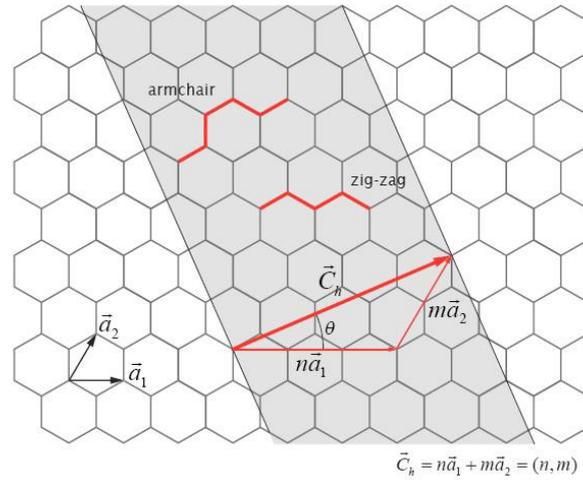


Figure VIII-2: Schéma de la construction d'un nanotube par enroulement d'une feuille de graphène

Nous savons que la longueur de la liaison carbone-carbone vaut  $\overline{a_{C-C}} = 0,142 \text{ nm}$  soit le paramètre de maille  $a = \|\vec{a}_1\| = \|\vec{a}_2\| = \sqrt{3}a_{C-C} = 0,246 \text{ nm}$ .

Les nanotubes sont obtenus en repliant la feuille de graphène en faisant coïncider les deux sites reliés par le vecteur chiral  $\vec{Ch}$ . Ce vecteur est donc la combinaison linéaire des deux vecteurs de base :  $\vec{Ch} = n\vec{a}_1 + m\vec{a}_2$  avec  $n, m$  des nombres entiers.

La base utilisée pour définir les coordonnées sur un plan hexagonal utilise un angle de  $60^\circ$  entre les deux vecteurs de bases  $\vec{a}_1$  et  $\vec{a}_2$ . Entre  $\vec{a}_1$  et  $\vec{Ch}$  apparaît l'angle chiral  $\theta$  permettant de définir le nanotube :

- $\theta = 0^\circ$  -  $n$  ou  $m$  est nul : nanotube de type zigzag, il est non chiral c'est-à-dire qu'il possède une symétrie miroir
- $\theta = 30^\circ$  -  $n$  est égal à  $m$  : nanotube de type chaise, il est chiral donc ne possède pas de symétrie miroir
- $\theta \neq 0^\circ \neq 30^\circ$  : nanotube de type chiral.

Le couple  $n, m$  permet de faire de nombreux calculs sur les nanotubes pour déduire les grandeurs suivantes :

Le diamètre du tube :

$$d = \frac{\|\vec{Ch}\|}{\pi} = \frac{a}{\pi} \sqrt{n^2 + nm + m^2} \quad (\text{VIII-10})$$

L'angle chiral :

$$\theta = \arctan \frac{\sqrt{3}m}{m + 2n} = \arccos \frac{(2n + m)}{2\sqrt{n^2 + m^2 + nm}} \quad (\text{VIII-11})$$

Longueur d'une maille élémentaire :

$$L = \frac{a_{c-c}(\sqrt{3}\sqrt{n^2 + m^2 + nm})}{d_R} \quad \text{avec } d_R = \text{PGCD}(2m + n, 2n + m) \quad (\text{VIII-12})$$

Le nombre d'atomes par maille :

$$N = \frac{4(n^2 + m^2 + nm)}{d_R} \quad (\text{VIII-13})$$

La chiralité va engendrer des conséquences sur la conduction des nanotubes. Les CNT peuvent être électriquement conducteurs ou semi-conducteurs et présenter des propriétés mécaniques très différentes dans leur module de Young leur coefficient de Poisson. Ces effets de chiralité sont d'autant plus prononcés que le diamètre est petit et s'efface à mesure que le diamètre augmente.

D. NANOTUBES DE CARBONE : ETAT DE L'ART DE E.MINOUX (E.MINOUX, 2006)

Ce premier tableau recense les informations pour des nanotubes individuels :

Emetteur	I [A]	Stabilité	Dégradation	Remarques
MWNT Arc électrique	2μA		Evaporation	1 <sup>er</sup> papier : émission due à une chaîne d'atomes de carbone ?
MWNT Arc électrique	100nA @ 0.12V.μm <sup>-1</sup>			Papier complémentaire : Emission Fowler-Nordheim
MWNT Arc électrique	2μA 200μA	±10% 100h ±10% sec	Destruction abrupte	Saturation pour I>0.1μA Instabilité de l'émission
MWNT Arc électrique	0.4μA	±10% 1400h		Distribution en énergie : spectre FWHM ~0.3eV. Déplacement du pic avec V <sub>appl</sub> Résistance de contact ?
Closed MWNT Closed MWNT Open MWNT Arc électrique	100μA	±10% 10sec	Destruction abrupte <10ms	Saturation pour I>0.1μA 0.1μA@170V 0.1μA@300V
SWNT Arc électrique	3μA 3μA 100nA 3μA 3μA	±15% 350h -75% 50h ±15% 100h -75% 50h ±15% 50h	Pas de dégradation Bombardement ions réactifs Pas de dégradation Bombardement ions réactifs Pas de dégradation	Sous vide Sous H <sub>2</sub> O (10 <sup>-6</sup> Torr) Sous H <sub>2</sub> O (10 <sup>-7</sup> Torr) Sous O <sub>2</sub> (10 <sup>-6</sup> Torr) Sous Ar, H <sub>2</sub> (10 <sup>-6</sup> Torr)
Closed MWNT Open MWNT Arc électrique	3nA@1000V 0.9μA@600V			Saturation (adsorbats ?)
SWNT Arc électrique	2μA >300nA		Pas de saturation Forte saturation	Après élimination des adsorbats H <sub>2</sub> O 10 <sup>-7</sup> Torr, adsorbats
MWNT Arc électrique	10pA 4nA	Stable Instable		Forte saturation
MWNT CVD	200μA		Domages structurels Arrachage de feuillets	Nécessité d'augmenter E <sub>appl</sub>
SWNT Arc électrique	300nA-2μA		Evaporation assistée par champ électrique	Déviation I-V quand T augmente
MWNT CVD	200nA-1μA	Instable	Dégradation graduelle du nanotube	
MWNT CVD	<300nA >300nA 10μA		Instabilité du courant Saturation Destruction	Présence d'adsorbats Résistance de contact T augmente
MWNT CVD	10μA@40V.μm <sup>-1</sup> 250μA@65V.μm <sup>-1</sup>	Instable	Dégradation graduelle des feuillets	Forces électrostatiques Chauffage par effet Joule
MWNT CVD	0.1μA			Forte saturation

MWNT CVD	1μA	Stable (désorption)		T <sub>apex</sub> =2000K @ 1.3μA R <sub>CNT</sub> diminue avec T
MWNT PECVD	20μA		Evaporation du nanotube	Forte saturation due à des adsorbats Désorption pour I > 1μA
MWNT PECVD	10-20μA		Saturation à forts courants Destruction	Destruction due aux forces électrostatiques ?
MWNT Arc électrique	100nA 200nA	±10% 1h	Adsorbats Destruction	Distribution en énergie spectre FWHM ~0.25eV
MWNT CVD	4μA (r=3nm) 180μA (r=20nm)		Destruction par claquage	Chauffage par effet Joule Evaporation
MWNT CVD	0.1μA			Courant très instable adsorbats
MWNT CVD	10μA <1μA >1μA		Courant maximum Dégradation mécanique (contact nanotube/substrat) Evaporation du nanotube	Forte saturation pour I>0.1μA, résistance de contact entre le nanotube et le substrat
MWNT CVD	0.3μA		Saturation	Diminution du courant émis avec la longueur du nanotube
MWNT CVD	2μA 26μA	±25% >1h ±2% 10min	Instable (adsorbats) Stable	Emission + favorable par nanotube perpendiculaire au substrat
MWNT Arc électrique	>10μA	Instable	Dégradation graduelle des feuillets	
MWNT CVD	100nA	>1 year		2.10 <sup>-10</sup> mbar
MWNT CVD	<1μA 2μA > 2μA	±0.1% 1h ±0.5% 1h	Excellente stabilité Instabilité Dégradation	
MWNT CVD	1μA			Φ=5.1±0.1eV
MWNT CVD	<50μA >50μA		Emission stable Destruction	Dégradation graduelle des feuillets

Tableau VIII-1 : Etat de l'art d'E. Minoux pour l'émission électronique par nanotubes

Ce second tableau recense des films en nanotubes :

Emetteurs	S [cm <sup>2</sup> ]	I	J [A.cm <sup>-2</sup> ]	E <sub>appl.</sub> [V.μm <sup>-1</sup> ]	Stabilité	Dégradation	Remarques
Nano-filaments	0.003	1.4mA	0.5 0.2	100 50	100h	Claquage, chauffage par effet Joule	
MWNT Arc électrique	0.01	1mA	0.1	35			
Nano-filaments	0.003	2.8mA	0.9	83			
Nano-filaments	0.0028	1.8mA	0.6	67			@ T=745K
MWNT Arc électrique	25 10 <sup>-6</sup>	10μA	0.4	15		Forte saturation Interaction entre NTs ?	MWNTs incorporés dans une matrice d'Epoxy
MWNT Arc électrique	0.025	10μA	0.45 10 <sup>-3</sup>	1.7			
MWNT Arc électrique	0.01	0.15mA	15 10 <sup>-3</sup>	6.5			
MWNT Arc électrique	25 10 <sup>-6</sup>	16μA	0.6	6		Forte saturation Interaction entre NTs ?	MWNTs incorporés dans une matrice d'Epoxy
SWNT Arc électrique	0.07	0.7mA	10 10 <sup>-3</sup>	4.5		Forte saturation SWNTs non métalliques ?	
MWNT CVD	0.1	0.1μA	1 10 <sup>-6</sup>	2			
SWNT laser ablation	1 10 <sup>-4</sup>	0.4mA	4 20 10 <sup>-3</sup> 0.5	60 6 17	Max. Stable Instable	Dégradation due aux ions	Saturation à forts courants
MWNT CVD	0.006	60μA	10 10 <sup>-3</sup>	6			
MWNT CVD	8 10 <sup>-5</sup>	80μA 21μA 1μA	1 0.25 0.0125	12	Max. ±5% ±20%	Forte saturation Etats localisés à la pointe ?	Forte saturation
MWNT Arc électrique	5 10 <sup>-4</sup>	0.5mA	1	1.5		Forte saturation	
SWNT Arc électrique	16.67	1.5mA	9 10 <sup>-5</sup>	3		Forte saturation	
MWNT CVD	0.01	0.5mA	50 10 <sup>-3</sup>	5		Forte saturation I> 10μA	Nanotubes alignés perpendiculairement au substrat
MWNT CVD	0.09	270μA 120μA	3 10 <sup>-3</sup> 1.3 10 <sup>-3</sup>	4 3	Max. ±2% 1h	Forte saturation	
MWNT CVD	2.5 10 <sup>-3</sup>	3.8mA	1.5	17.5		Saturation	Mauvais contact électrique, bombardement ionique ?
MWNT CVD	3.3 10 <sup>-6</sup>	10μA	3	6.3	2h	Chute progressive du courant 0.1A.cm <sup>-2</sup> en 20h	
MWNT PECVD	1	10mA	10 10 <sup>-3</sup>	15		Très forte saturation	
MWNT PECVD	0.002	0.2mA	0.1	4			Film dense φ=5±0.3eV
MWNT CVD	1	5mA	5 10 <sup>-3</sup>	7		Bonne stabilité après conditionnement -0.1mA	Film dense
MWNT CVD	0.007	0.7mA	0.1	8.2		Conditionnement pour obtenir émission reproductible	Saturation du courant Film idéal : nanotubes localisés
MWNT CVD		1.5μA		2	±10%	Décroissance du courant	Film dense Bombardement ionique
MWNT Arc électrique	0.017	0.14mA	8.2 10 <sup>-3</sup>	7		Saturation du courant	Film dense
MWNT Arc électrique	0.7	5mA	7.2 10 <sup>-3</sup>	5		Saturation du courant	Film dense
MWNT CVD	1	0.1mA	10 <sup>-4</sup>	8			Film dense
MWNT PECVD	0.07	0.3μA 1μA 20μA 1mA	0.3 10 <sup>-3</sup> 15 10 <sup>-3</sup>	7.5 7.5 7.5 14	Max.	Forte saturation	Film dense Film moins dense Réseaux de CNs individuels
MWNT CVD	26.6 10 <sup>-6</sup>	13.3μA	0.5	9			Film dense
MWNT CVD	8 10 <sup>-3</sup>	5μA	6 10 <sup>-4</sup>	6			Film dense
MWNT CVD	7 10 <sup>-3</sup>	0.35mA	0.05	8			Film dense
SWNT Ablation laser	0.125	16mA 1.8mA	0.13 0.014	11.3 6.5	±3% 10h	Saturation	Meilleure configuration : nanotubes localisés
SWNT Ablation laser	0.2	28mA	0.14	8		Saturation	
MWNT CVD MWNT CVD	2.25	6.75mA 22.5mA	3 10 <sup>-3</sup> 10 10 <sup>-3</sup>				Film continu Blocs localisés
MWNT PECVD	1	0.1mA	1 10 <sup>-4</sup>	12		Saturation	Film dense
MWNT PECVD	1	0.1mA	1 10 <sup>-4</sup>	6		Résistance en série ?	Film moins dense
SWNT	1	2mA 1mA	2 10 <sup>-3</sup> 10 <sup>-3</sup>	8 7.3	-30% 25h		Plots de SWNTs
MWNT PECVD	0.5	5mA	9.4 10 <sup>-3</sup>	18.8		Forte saturation	
MWNT PECVD	2 10 <sup>-3</sup>	1.2mA	0.6	6		Conditionnement Impact néfaste de O <sub>2</sub>	Film continu
MWNT PECVD	10 <sup>-3</sup>	0.1mA	0.1	1		Peu de dégradation	
MWNT CVD			7 10 <sup>-3</sup>	6	Stable		
MWNT CVD	1.75	35mA	20 10 <sup>-3</sup>	5			

## E. PRÉSENTATION DU SPECTROMÈTRE INEA

### VIII.E.1 ÉMISSION DES ÉLECTRONS

Il s'agit ici de la surface comprenant les nanotubes de carbone (CNT), ainsi que deux grilles appelées  $G_1$  et Anode. Les CNT sont polarisés à un potentiel électrique entre -200 V et -300 V et la grille  $G_1$  est à la masse. L'objectif ici est de créer un champ électrique de l'ordre de  $10^6 \text{ V}\cdot\text{m}^{-1}$ . Ainsi, par effet de champ, il y a émission d'électrons à partir du sommet des nanotubes de carbones. Le champ électrique présent entre  $V_{CNT}$  et  $V_{G1}$  permet ainsi d'accélérer les électrons émis avec une énergie comprise entre 200 et 300 eV (typiquement  $V_{CNT} = E_{\text{Electrons émis}} \pm 0,5 \text{ eV}$ ). Les électrons émis par les CNT sont dits « primaires ».

### VIII.E.2 PASSAGE DES DEUX GRILLES

Une fois les électrons accélérés, ils traversent les deux grilles  $G_1$  et anode. Ces grilles ont chacune une transparence de 80 % créant une transparence globale de 60%. Les électrons, en impactant les grilles vont émettre des électrons secondaires. Un électron secondaire est arraché à la surface d'un solide lorsque ce solide est impacté par un faisceau d'électrons primaire. Le rendement de l'émission secondaire varie d'un matériau à l'autre et en fonction de l'énergie des particules incidentes. Généralement, le rendement est supérieur à 1 dans une gamme d'énergie comprise entre 30 eV et 1 keV.

Un autre phénomène apparaît lorsque les électrons primaires traversent les deux grilles. Certains de ces électrons vont être déviés par les grilles. Un électron tangent à un fil de la grille sera dévié. Ainsi, au niveau global, on observe une défocalisation du faisceau d'électrons primaires.

La population électronique à la sortie d'anode est divisée en 2 parties :

- Les électrons primaires à haute énergie et ionisante ( $E > 40 \text{ eV}$ ) ;
- Les électrons secondaires à basse énergie ( $E < 20 \text{ eV}$ ).

#### VIII.E.2.1.1 Ionisation

La chambre (ou volume) d'ionisation est un espace cubique de  $13 \times 13 \times 15 \text{ mm}^3$ . Au-dessous de celle-ci se trouve la partie émissive. Chaque face de ce volume est une plaque métallique en laiton.

Le calcul théorique nous permet de faire une première estimation du rendement de la source d'ionisation et du courant attendu sur le collecteur.

- La pression :  $P = 10^{-6} \text{ mbar} = 10^{-4} \text{ Pa}$  ;
- La température :  $T = 293,15 \text{ K}$  ;
- Le volume d'ionisation considéré :  $V = 1 \text{ cm}^3$  ;
- La section efficace d'ionisation pour un électron incident à 250 eV :  $\sigma = 2,078 \times 10^{-16} \text{ cm}^2$  ;
- Courant émis par les CNTs :  $I = 100 \text{ }\mu\text{A}$  pour  $\sim 1 \text{ cm}^2$  de surface émissive.

Calcul du nombre de molécules dans le volume d'ionisation grâce à la loi des gaz parfaits :

$$PV = N k_B T \quad (\text{VIII-14})$$

$$N = \frac{PV}{k_B T} = 2,47 \times 10^{10} \text{ molécules} \cdot \text{cm}^{-3}$$

Calcul du courant d'électrons :  $I_e = \frac{I}{q} = 6,24 \times 10^{14} e \cdot s^{-1} \cdot cm^{-2}$

Calcul de la probabilité d'ionisation :  $T_e = N \times \sigma = 5,13 \times 10^{-6} ions \cdot cm^{-1} \cdot e^{-1}$

Avec un courant de  $10^{-4}$  A en entrée, dans le volume d'ionisation de  $1 \text{ cm}^3$ , pour une efficacité d'extraction d'ions parfaite, on obtient un courant d'ions théorique :

$$I_i = T_i \times q = 0,51 \times 10^{-9} ions \cdot s^{-1} \cdot cm^{-3} = 0,51 \text{ nA} \cdot cm^{-3}$$

Ces calculs théoriques ont été confirmés par des tests sur la source d'ionisation (Steichen et al. 2024).

## F. SIMULATION ES-PIC DE LA SI CNT

### VIII.F.1.1 Paramètres

Pour la simulation ES-PIC (*Electrostatic - Particle In Cell*), nous avons utilisé les mêmes paramètres que pour la simulation Tracking, notamment un champ magnétique de 0,75 T et une tension de 1000 V à l'anode. Cette uniformité permet une comparaison directe des résultats entre les deux types de simulations.

Dans les deux cas, nous observons une distribution similaire des particules en fonction de leur énergie au sein de la source d'ions, comme illustré dans la Figure VIII-3. Cette répartition montre que, dans la zone d'extraction, les particules possèdent une énergie proche de 100 eV, ce qui augmente la probabilité de création d'ions dans cette région. Cette dynamique est constante entre les deux simulations, indiquant que les paramètres de base influencent de manière prévisible le comportement des particules au sein de la source d'ions.

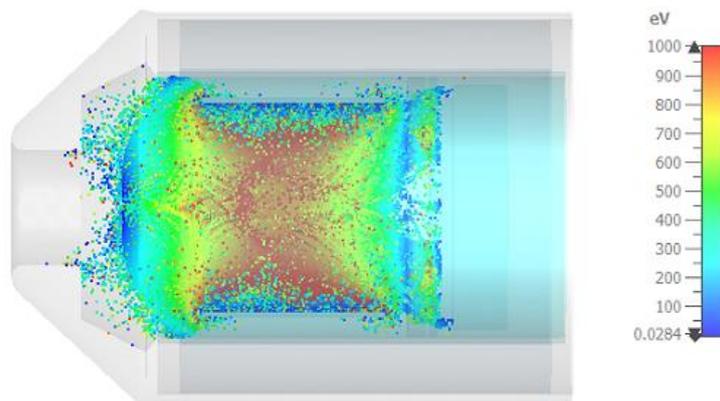


Figure VIII-3 : Énergie des particules dans la source d'ions CNT en simulation ES-PIC

Pour la simulation ES-Pic avec CNT, nous avons choisi de nous concentrer uniquement sur le démarrage de la source d'ions. Notre objectif était de valider les paramètres utilisés pour l'ionisation du gaz. Étant donné les contraintes de temps de simulation, nous avons décidé de ne pas simuler un plasma ou une extraction d'ions.

Le graphique de la Figure VIII-4 montre l'évolution du nombre d'événements d'ionisation par rapport au temps. La courbe montre une croissance relativement linéaire avec des fluctuations mineures. Cela indique une stabilité dans le processus d'ionisation, avec une augmentation régulière des événements. Une augmentation régulière du nombre d'événements suggère que le système simulé maintient une efficacité constante d'ionisation.

La simulation présentée en parallèle a été réalisée dans le cadre d'une étude approfondie de la physique du tube Sodilog. Son objectif était de reproduire le mécanisme du temps de montée et du courant plateaux observés lors des émissions pulsées. Pour atteindre ce but, la quantité d'électrons au démarrage a été significativement augmentée, résultant en un temps de retard de seulement 2  $\mu$ s dans la simulation, à comparer aux 28  $\mu$ s observés en réalité. Pour pouvoir simuler un temps de retard de 7,9  $\mu$ s, cette simulation a duré plus de 1000 heures et a requis plus de 23 Go de mémoire.

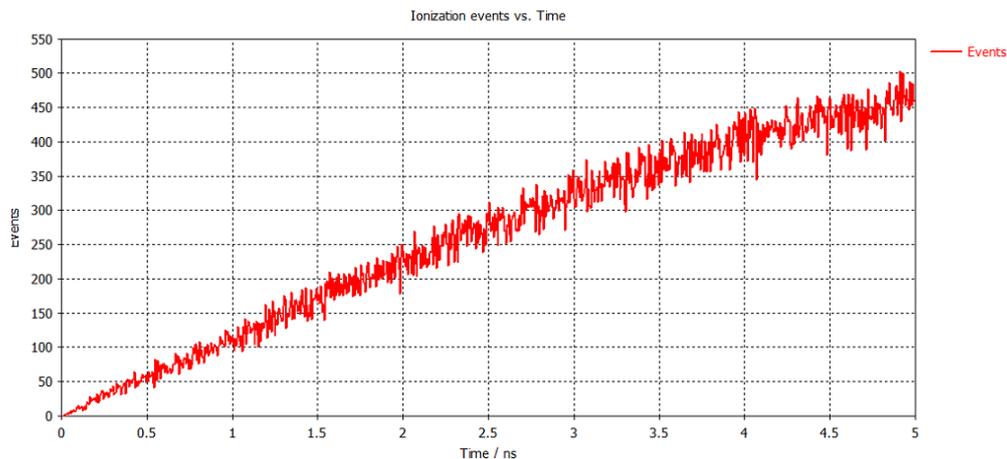


Figure VIII-4 : Nombre d'ionisation par rapport au temps

Le tableau suivant offre un récapitulatif des particules créées lors de simulations comparant une source d'ions actuelle à une version améliorée utilisant des nanotubes de carbone (CNT). L'ajout de CNT permet une injection permanente d'électrons dans la source, augmentant significativement le taux de création de particules secondaires et d'ions. En prenant en compte le nombre initial de particules, la simulation intégrant les CNT montre une augmentation de 2,38 fois le nombre de particules créées par ionisation par rapport à la configuration de référence. De plus, en termes temporels, avec les CNT, 280000 ions sont créés par nanoseconde, contre seulement 75000 pour la simulation d'origine.

Paramètre	Simulation avec CNT	Simulation de référence Sodilog
Initial particle number	66386	2055530400
Particles collided	861849	833099843
Particles passed away	0	0
Particles blocked in emission	0	0
Particles emitted into solid	2465	0
Particles dying in emission model	0	0
Secondary particles created	833454	599357260
Ionization particles created	215	2791490
Final particle number	35956	250771
Final simulation time (ns)	2,97	7960,79

Tableau VIII-2 : comparatif des résultats de simulation avec CNT avec la simulation de référence de la source d'ions actuelle du Sodilog

Il est important de noter que ces valeurs doivent être interprétées avec prudence. L'objectif principal de ces simulations est de valider les constantes physiques utilisées pour augmenter les probabilités d'interaction du gaz avec les électrons.

## G. ESSAIS SUR LES CNT AU LATMOS

### VIII.G.1.1 Banc d'essai LATMOS

Le banc d'essai utilisé pour les tests se trouve dans les bâtiments du LATMOS à Guyancourt. Il s'agit d'une chambre à vide, au sein de laquelle deux pompes – une pompe primaire et une turbopompe pour le vide poussé – créent un vide nécessaire pour les tests de dispositifs. La chambre est hermétiquement fermée à l'aide de 24 vis sur le couvercle, après quoi les deux pompes sont activées séquentiellement. La turbopompe est enclenchée une fois que la pression interne atteint  $10^{-1}$  mBar et le dispositif peut être testé lorsque la pression descend en dessous de  $2 \cdot 10^{-6}$  mBar, ce qui prend généralement entre 2 et 4 heures de pompage.

On retrouve une photo de ce banc dans la Figure VIII-5, il se compose :

- Le dispositif testé avec les câbles connectés au couvercle de la chambre.
- La pompe primaire, qui commence le pompage, et la turbopompe, qui atteint des pressions de vide élevées.
- De l'azote sous pression utilisé pour une re pressurisation propre et aussi sèche que possible lors de l'ouverture de la chambre à vide.
- Un manomètre dont les données peuvent être lues par le programme LabVIEW sur l'ordinateur de test.
- L'ordinateur de test, dédié à la surveillance des tests grâce à un programme LabVIEW, qui permet à l'ordinateur de contrôler les instruments de test, les convertisseurs de tension, etc.
- Plusieurs multimètres sont utilisés. Initialement, deux multimètres contrôlés par Bluetooth ont été employés mais ont été remplacés par des multimètres statiques à double mesure en raison de la transmission de données non fiable. Un pico-ampèremètre, instrument très précis, a également été utilisé pour les tests.
- Une source de tension variable de 12V.
- Un convertisseur de tension DC-DC, convertissant précisément le courant entrant selon les instructions de l'ordinateur.
- Une résistance de 220k $\Omega$  pour atténuer les variations de courant appliquées au dispositif.

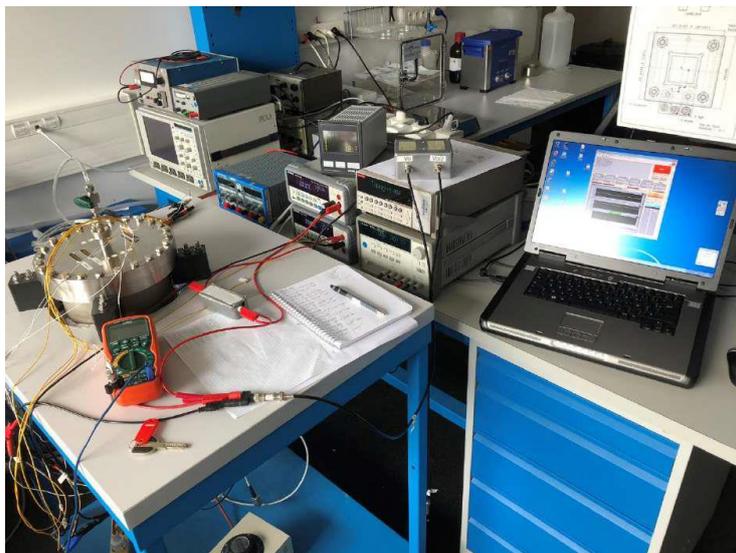


Figure VIII-5 : Dispositif d'essai du LATMOS

### VIII.G.1.2 Architecture de la source

La géométrie des cathodes a été choisie de façon à s'adapter au bâti du LATMOS et à celui de Sodern. Elles sont planes avec des bords arrondis pour éviter l'effet de bord, correspondant à la concentration des lignes de champs au bord des électrodes. Un dépôt de nanotubes fait par NAWA technologies forme un carré de 10×10 cm<sup>2</sup> au centre de la cathode.

Ces cathodes sont ensuite intégrées dans la source d'électrons d'INEA. L'architecture et la composition de cette source d'électrons sont détaillées dans le Tableau VIII-3. Voici quelques éléments clés de cette configuration :

Montage	Intérêt	Matériaux	Taille (µm)
<b>Collecteur</b>	Collecte la plupart des électrons	Acier inoxydable	1000
<b>Entretoise</b>		Polyétheréthercétone (PEEK)	1500
<b>Anode (grille)</b>	Rend homogène les lignes de potentiel 80% de transparence	Grille	200/Grille/200
<b>G1</b>	Fait office d'anode 80% de transparence	Grille + alumine	510
<b>Entretoise métallisée</b>		Kapton	75
<b>Entretoise</b>	Espacement entre CNT et grille	Kapton	150
<b>Entretoise métallisée</b>	Métallisation du même côté que les CNT Cache pour les côtés hétérogènes des CNT pour avoir une émission plus homogène et droite	Kapton, polymère	75
<b>Entretoise spacer</b>	Evite le contacte entre les CNT et la grille, tout en étant pas trop élevé pour avoir le même potentiel électrique	Acier inoxydable	Souvent h+50 µm
<b>CNT sur une base</b>		Acier inoxydable avec silicium comme substrat	h
<b>Base de connecteur</b>	Assure que chaque niveau de l'assemblage peut être connecté	PEEK (polyéther éther cétone)	

Tableau VIII-3 : Montage de l'émetteur pour le LATMOS

La tension appliquée aux CNT est contrôlée via LabVIEW et les grilles G1 et Anode connectées à la masse. L'extraction des électrons est donc réalisée par la différence de potentiel entre les CNT et G1.

### VIII.G.1.3 Résultats obtenus au LATMOS

Pour les comparer entre elles, nous cherchons à avoir la même distance Anode-Cathode cependant nous avons dû augmenter cette distance pour la cathode SOD20-01 en raison de problèmes d'isolation. Chaque cathode a subi deux types de cycles : des cycles de vieillissement et un cycle de mesure. Les paramètres utilisés pour le cycle de mesure sont résumés dans le tableau ci-après :

Echantillon	Distance $\mu\text{m}$	Pression (mbar)	Vmin (V)	Vmax (V)	Vstep (V)	Tstep (s)	Tdelay (s)	Tlevel (s)	Répétition
SOD20-01	275	$1 \times 10^{-5}$	150	350	1	5	20	0	20
SOD20-02	125	$5,8 \times 10^{-6}$	180	400	1	5	20	0	20
SOD20-03	125	$1,2 \times 10^{-5}$	150	350	1	5	20	0	20
SOD20-04	125	$1,2 \times 10^{-5}$	150	350	1	5	20	0	20

Tableau VIII-4 : Paramètres de mesure pour les cathodes SOD20-XX

On retrouve les courbes I-V de toutes les cathodes dans la figure suivante :

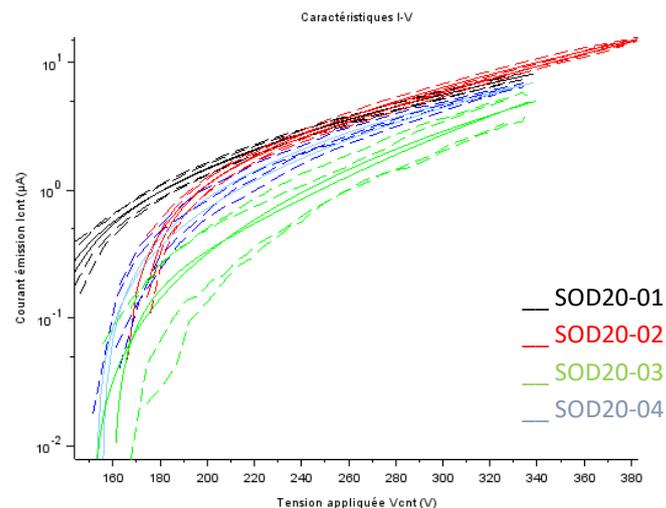


Figure VIII-6 : Courbe I-V

Tout d'abord, il est important de souligner que toutes les cathodes ont émis des électrons et qu'elles suivent une courbe standard d'émission de champs.

Pour comparer les cathodes entre elles, nous nous plaçons à une énergie donnée et observons le courant émis :

- A 200 V, la cathode n°1 a un courant de 1,72  $\mu\text{A}$ , elle est talonnée par la cathode n°2 à 1,11  $\mu\text{A}$  ;
- A 320 V, la cathode n°2 émet cette fois-ci plus que la cathode n°1 (8,18  $\mu\text{A}$  contre 7,77  $\mu\text{A}$ ).

Les cathodes n°3 et n°4 ont des courants d'émission inférieurs ainsi qu'un écart type supérieur.

Pour continuer la comparaison, on retrouve, sur la Figure VIII-7 **Erreur ! Source du renvoi introuvable.**, ces données en coordonnées de Fowler-Nordheim qui nous a permis d'extraire le facteur d'amplification de champs  $\beta$ .

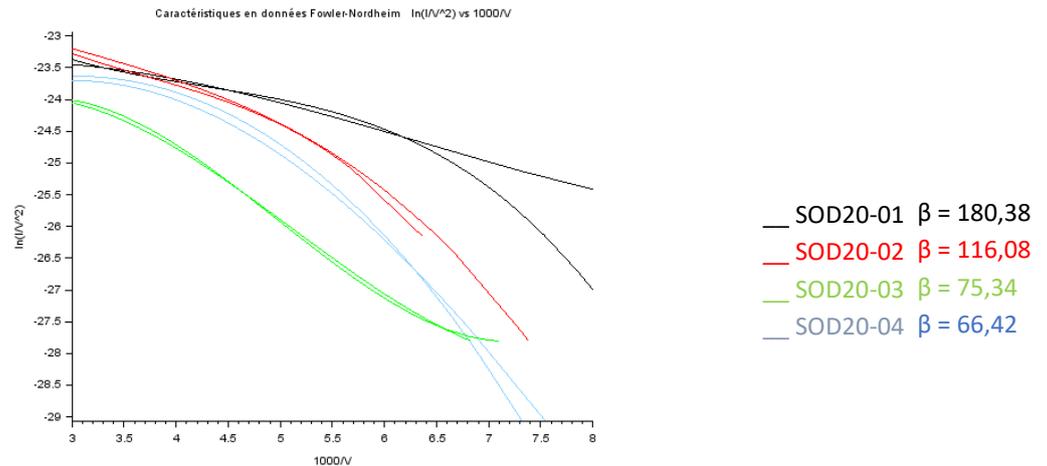


Figure VIII-7 : Courbe en données Fowler-Nordheim

Le facteur d'amplification du champ est plus grand pour la cathode n°1 comparé aux trois autres, ce qui est avantageux. Bien que très présent dans la littérature et aux mêmes ordres de grandeur, ce facteur est difficilement interprétable et il n'est pas utilisé par l'équipe du LATMOS.

#### VIII.G.1.4 Test comparatif à Sodern

Pour des raisons pratiques, la distance inter-électrode minimum à Sodern est de 500  $\mu\text{m}$ . On retrouve les différentes caractéristiques de montages dans le tableau suivant :

	LATMOS	SODERN
Distance inter-électrode ( $\mu\text{m}$ )	125 - 275	500 (+/- 10)
Montage	Succession Kapton Alumine grille percé de $10*10 \text{ mm}^2$ Recouvrement des bords du tapis de CNT par un Kapton	Vide
Polarisation	Grille	Anode

Tableau VIII-5 : Comparatif de montage entre le LATMOS et Sodern

De façon à comparer les deux montages, nous calculons le champ électrique entre l'anode et la cathode.

Dans les tests effectués à Sodern, présents dans la Figure VIII-8, les courbes IV montrent une augmentation du courant en fonction de l'augmentation du champ électrique, en accord avec la loi de Fowler-Nordheim qui prédit une augmentation exponentielle. Cette tendance est similaire à celle observée au LATMOS, où les échantillons SOD20-01 et SOD20-02 affichent une meilleure émission que les échantillons SOD20-03 et SOD20-04. En particulier, les échantillons SOD20-01 et SOD20-02 commencent à émettre du courant à des valeurs de champ électrique plus faibles comparativement aux deux autres échantillons.

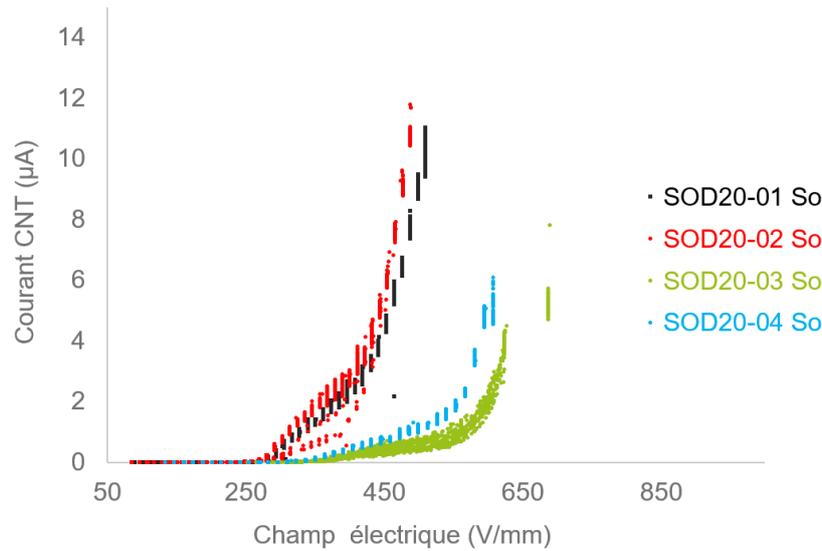


Figure VIII-8 : Courbe I-V

Ils montrent aussi une croissance plus rapide du courant, tandis que SOD20-03 et SOD20-04 nécessitent un temps plus long pour atteindre une croissance exponentielle du courant.

Si nous comparons de manière exhaustive les courants émis par les échantillons SOD01 et SOD02 entre les laboratoires de LATMOS et de Sodern, nous obtenons la Figure VIII-9.

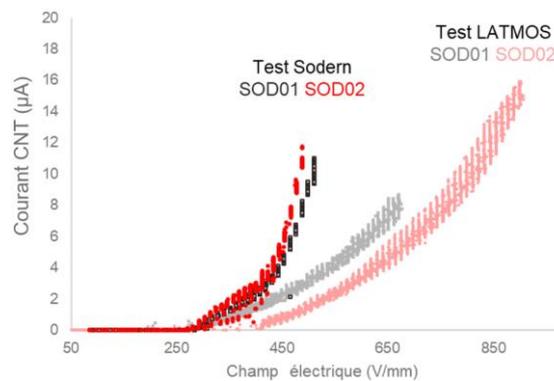


Figure VIII-9 : Courbe I-V comparative LATMOS et Sodern

Les valeurs de champ électrique de démarrage sont similaires entre les deux laboratoires. Cependant, les courants émis par les échantillons SOD01 et SOD02 montrent une augmentation du courant plus prononcée à Sodern qu'au LATMOS.

Les différences observées entre les résultats obtenus à Sodern et ceux au LATMOS sont principalement attribuées à des variations dans l'environnement de test et la configuration des dispositifs. À Sodern, la cathode est entourée par le vide, ce qui permet de capter l'ensemble des électrons produits. En revanche, au LATMOS, les bords du tapis de nanotubes sont recouverts par un Kapton métallisé. Ce revêtement élimine les champs électriques élevés présents sur ces bords, ce qui a pour effet d'inhiber l'émission des électrons. Ces différences entre les laboratoires soulignent l'importance de la standardisation des protocoles de test et de l'équipement pour assurer la comparabilité des données.

## H. ESSAIS SUR LES ANODES DES SI SODILOG

Ces tests ont été réalisés suite à la lecture des documents de A. Sy en 2012 et Yang en 2018.

Les anodes des sources de Penning sont généralement en acier inoxydable non magnétique. En changeant la matière de cette électrode, on peut influencer les performances de la source d'ions, en modifiant :

- L'émission électronique secondaire, caractérisée par le coefficient  $\gamma$ ,
- La recombinaison en surface des ions moléculaires, influencée par le travail de sortie  $\phi$  des matériaux.

Dans ces documents, les expériences ont révélé des différences notables dans la fraction d'ions atomiques produite selon le matériau des électrodes utilisé, que l'on retrouve dans le tableau ci-dessous. Typiquement, la fraction d'ions atomiques varie entre 6 et 9 % pour la plupart des matériaux, sauf pour le nitrure de bore (BN) appliqué sur l'aluminium où elle atteint 16 %. Ce résultat exceptionnel avec le BN indique une réduction significative de la recombinaison des ions moléculaires en surface, permettant ainsi une augmentation de la fraction des ions atomiques.

	H <sup>+</sup> (%)	H <sub>2</sub> <sup>+</sup> (%)	H <sub>3</sub> <sup>+</sup> (%)	Beam current density ( $\mu\text{A}/\text{cm}^2$ )
Aluminium	6.9	92.8	0.3	110.9
Molybdenum	6.3	93.3	0.4	145.9
Gold	7.7	91.3	1.0	219.2
Graphite	8.0	91.5	0.5	185.7
Platinum	8.9	90.1	1.0	229.4
Aluminium with boron nitride	16.2	80.4	3.4	79.5

Figure VIII-10 : Fractions d'ions et densité de courant de faisceau pour des décharges avec différents matériaux d'électrodes.

De plus, le courant extrait de la source a été nettement amélioré, en particulier avec l'utilisation des électrodes en or et en platine, où le courant a été augmenté d'environ deux fois par rapport à la configuration standard. Cette amélioration est attribuée aux propriétés de ces matériaux qui favorisent une forte émission électronique secondaire ainsi qu'une moindre recombinaison en surface, optimisant ainsi l'efficacité globale de la source d'ions.

Au sein de Sodern, nous avons mené des tests comparatifs utilisant des cathodes de différents matériaux afin d'augmenter les performances de notre faisceau d'ions. Ces tests s'appuient sur des études antérieures et ont impliqué l'utilisation des matériaux listés dans le tableau ci-dessous :

Numéro d'assemblage	Matériau	Dimension (mm)	Commentaire
ASSY00026057	Inox 316L	9,5	Anode complète
ASSY00026063	Inox 316L	8	Corps
ASSY00026074	Inox 316L	9,5	Corps

ASSY00026075	Inox 316L	11	Corps
ASSY00026067	Cuivre	8	Corps
ASSY00026069	Argent	8	Corps
ASSY00026070	Molybdène	8	Corps
ASSY00026068	Aluminium	8	Corps

Tableau VIII-6 : Anodes

Les cathodes sont conçues pour être interchangeables et sont montées sur une embase d'anode fixe de 1,5 mm avec une rainure de 0,5 mm en Inox 316L, facilitant ainsi le montage et le démontage, comme illustré dans la Figure VIII-11.

La connexion électrique de l'anode se réalise via les pattes de l'anode et un domino en cupro-aluminium ou en cuivre. Des manchons de connexion peuvent être utilisés si les dominos ne sont pas appropriés.

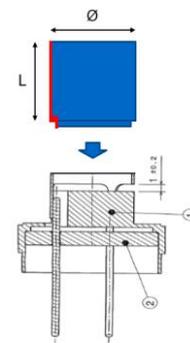


Figure VIII-11 : Schéma de l'embase avec une anode

Les tests ont été réalisés sur le banc Epsilon, comme présenté dans le chapitre IV.A.2. Les résultats obtenus avec les anodes de dimension standard (8 mm) ne peuvent pas être directement comparés à ceux de notre source d'ions actuelle qui mesure 9 mm. Néanmoins, nous avons observé de meilleurs résultats avec l'anode de 9 mm, confirmant l'importance de l'adaptation dimensionnelle des composants dans l'amélioration des performances du faisceau d'ions.

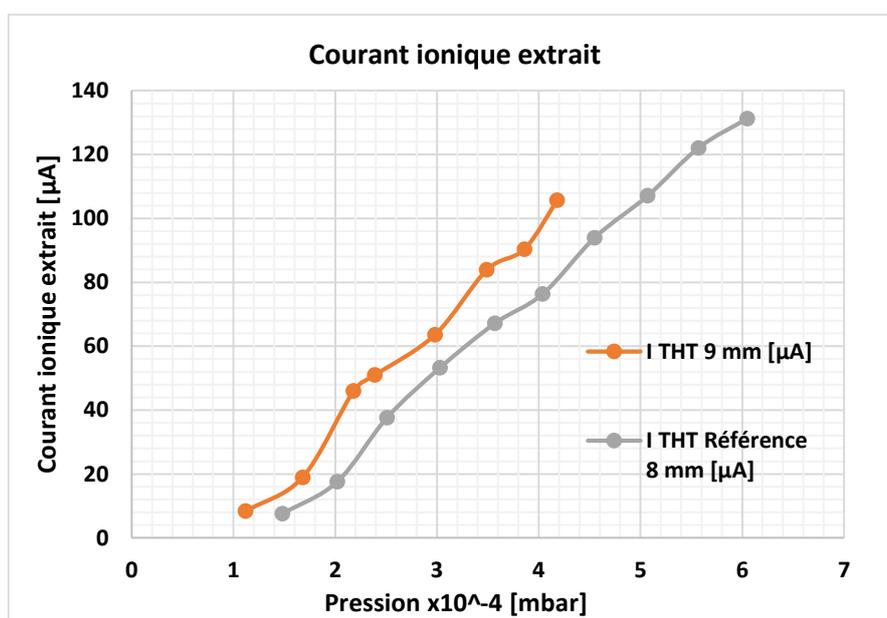


Figure VIII-12 : Courant ionique avec deux sources d'ions ayant une anode de 8 ou 9 mm

### VIII.H.1 EMISSION EN CONTINU

Les premiers tests effectués en émission continue ont permis d'obtenir les résultats présentés dans la Figure VIII-13. Avec tous les matériaux testés, on observe une augmentation du courant ionique

proportionnelle à l'augmentation de la pression. Cependant, en examinant les données plus en détail, certaines différences notables apparaissent.

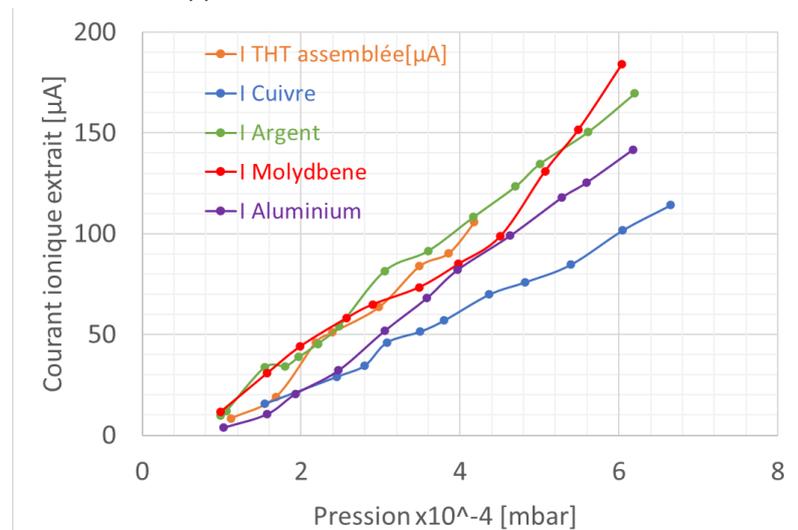


Figure VIII-13 : Courant ionique avec différents matériaux de l'anode en continu

Le cuivre, représenté par la courbe bleue, montre un courant d'émission allant jusqu'à être 40% inférieur à celui de la courbe orange, qui est l'anode en Inox 316L de référence pour ces essais. À l'opposé, l'anode en argent, représentée par la courbe verte, présente une augmentation de courant allant jusqu'à 25% au-dessus de la référence. Pour le molybdène, il est à noter que les courbes s'entrecroisent, ce qui rend difficile l'obtention de résultats significatifs.

## VIII.H.2 EMISSION EN PULSÉE

Pour évaluer l'efficacité de l'émission pulsée avec différents matériaux d'anodes, nous avons utilisé deux configurations distinctes, nommées GENIE 16 et C/O. Nous nous sommes basés sur les résultats actuelles de la source d'ions Sodilog ayant les caractéristiques suivantes selon le mode d'utilisation :

Mode	GENIE 16	C/O
Pression (mbar)	2,04E-03	1,89E-03
Retard à l'amorçage (µs)	26	28
Courant plateau (mA)	2,81	2,25

Tableau VIII-7 : caractéristiques temporelles des pulses en mode Genie16 et C/O de la source d'ions du SODILOG

Dans les tests réalisés, nous avons d'abord examiné le retard à l'amorçage, en nous plaçant aux pressions spécifiques à chaque mode comme le montre la Figure VIII-14. Le cuivre présente le retard le plus élevé dans le mode GENIE 16, ainsi qu'aucune valeur en C/O dû à une pression insuffisante pour créer un plasma. D'autre part, l'argent affiche les meilleurs temps de retard, avec un retard de 25,1 µs en mode GENIE 16. Cette amélioration est à prendre avec du recul car le retard à l'amorçage actuelle de la source d'ions du tube neutronique Sodilog est de 26 µs.

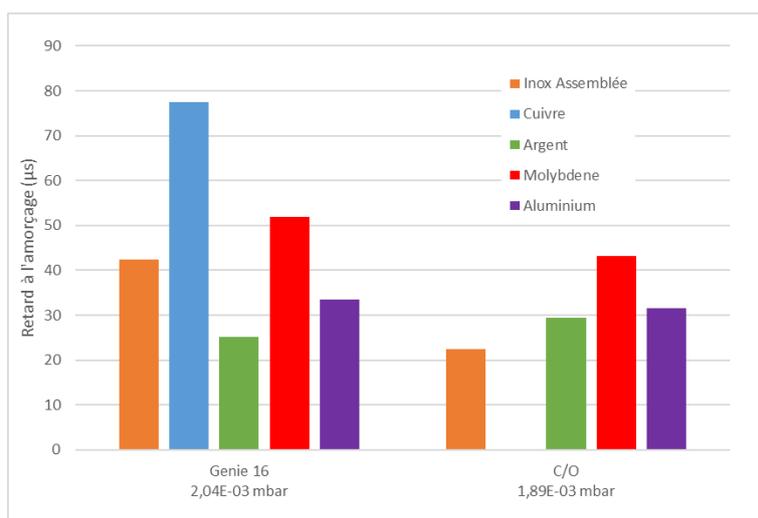


Figure VIII-14 : Retard à l'amorçage avec différents matériaux de l'anode en pulsée pour les mode Genie16 et C/O

Via la Figure VIII-15, nous cherchons à obtenir des courants plateaux supérieurs à ceux obtenus avec notre anode standard en inox 316L présenté en orange. Les résultats montrent que l'anode en aluminium fournit un meilleur courant. Cependant, les valeurs de courant pour les différents matériaux testés sont relativement proches, variant entre 2,34 et 3,04 mA, à l'exception de l'anode en cuivre qui montre des performances inférieures.

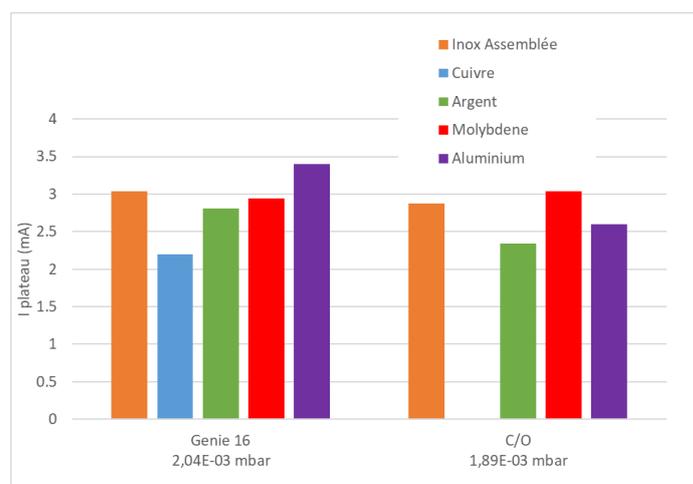


Figure VIII-15 : Courant plateau avec différents matériaux de l'anode en pulsée pour les mode Genie16 et C/O

Ces deux paramètres influent directement le courant moyen en prenant en compte le retard à l'amorçage grâce au rapport cyclique ionique. On retrouve les valeurs de ce courant moyen dans la Figure VIII-16.

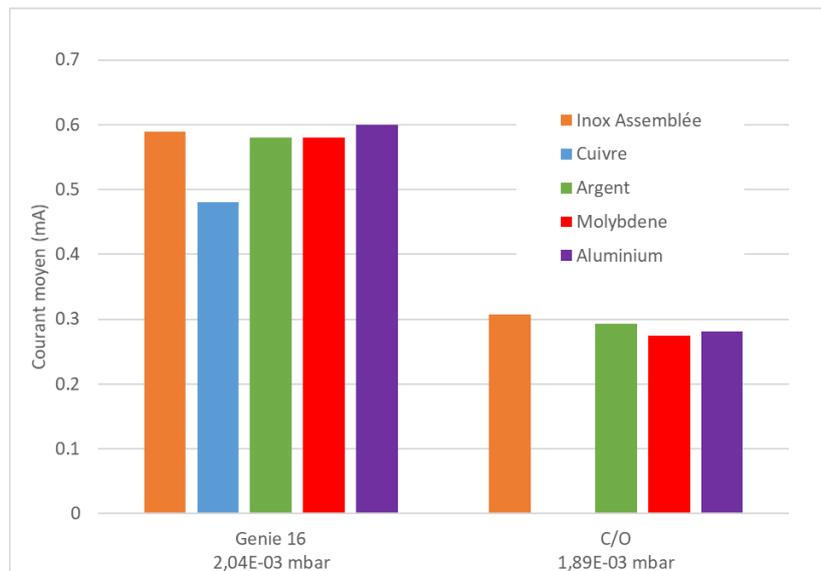


Figure VIII-16 : Courant moyen extrait avec différents matériaux de l'anode en pulsée pour les mode Genie16 et C/O

L'amélioration du temps d'amorçage avec l'anode en argent est contrebalancée par un courant plateau inférieur. De même, en mode C/O, l'amélioration du courant avec l'anode en molybdène est pénalisée par un retard à l'amorçage.

En conclusion, les résultats obtenus ne sont pas suffisamment significatifs pour justifier un changement de matériau de l'anode. Cette décision est d'autant plus justifiée par le coût de l'argent comparé à l'acier inoxydable 316L, passant de 69 €/g à moins de 0,01 €/g. De plus, notre expérience et les connaissances déjà acquises sur l'inox 316L renforcent cette décision.