



HAL
open science

Étude de l'équation d'état des matériaux ablateurs des capsules du Laser Mégajoule

Pierre Colin-Lalu

► **To cite this version:**

Pierre Colin-Lalu. Étude de l'équation d'état des matériaux ablateurs des capsules du Laser Mégajoule. Physique des plasmas [physics.plasm-ph]. Université Paris Saclay (COMUE), 2016. Français. NNT : 2016SACLX054 . tel-01504226

HAL Id: tel-01504226

<https://pastel.hal.science/tel-01504226>

Submitted on 9 Apr 2017

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.

NNT : 2016SACLX054

THESE DE DOCTORAT
DE
L'UNIVERSITE PARIS-SACLAY
PREPAREE A
L'ÉCOLE POLYTECHNIQUE

ÉCOLE DOCTORALE N°572
Ondes et Matière

Spécialité de doctorat : Physique des Plasmas

Par

Pierre Colin-Lalu

Étude de l'équation d'état des matériaux ablateurs des capsules du
Laser Mégajoule

Thèse présentée et soutenue à l'École Polytechnique, le 19 Septembre 2016 :

Composition du Jury :

M. Patrick Mora, Directeur de Recherche, CNRS, Président du Jury
M. François Guyot, Professeur, Muséum National d'Histoire Naturelle, Rapporteur
M. Stéphane Bernard, Directeur de Recherche, CEA, Rapporteur
M. Thibault de Resseguier, Directeur de Recherche, CNRS, Examineur
M. Michel Koenig, Directeur de Recherche, CNRS, Co-directeur de thèse
M. Gaël Huser, Ingénieur de recherche, CEA, Co-directeur de thèse

Remerciements

Ce travail de recherche a permis d'explorer le domaine des équations d'état associant la théorie, la simulation et l'expérience. Étudier tous les aspects d'un domaine tel que celui-ci a été passionnant et a constitué une source de motivation au quotidien.

Je tiens ainsi à remercier Gaël Huser sans qui ce projet n'aurait pas pu voir le jour. J'ai beaucoup appris à son contact et j'ai pu profiter de sa grande expérience. Sa rigueur, son savoir-faire et sa disponibilité m'ont permis d'acquérir de nombreuses compétences qui me seront très utiles par la suite.

Je remercie également chaleureusement Vanina Recoules pour ses précieux conseils et son franc parlé qui m'ont reboosté et m'ont permis d'achever ce travail.

Je remercie aussi Norimasa Osaki pour nous avoir accueillis au sein de son équipe et nous avoir fait bénéficier de leurs expériences et savoir-faire. Il faut aussi noter que les expériences présentées ici n'auraient pas pu être menées à bien sans le travail de qualité des équipes techniques du LULI2000 et de GEKKO XII.

J'exprime également ma reconnaissance à mon directeur de thèse Michel Koenig aussi qu'aux membres du jury, et en particulier à François Guyot et à Stéphane Bernard qui ont accepté d'être les rapporteurs de cette thèse.

Ces remerciements ne seraient pas complets sans avoir une pensée pour mes collègues de travail au Commissariat à l'Énergie Atomique et aux Énergies Alternatives (CEA). Je remercie particulièrement Gwenaél Salin et Thomas Plisson pour l'excellence de leurs savoir-faire et le temps consacré à ce projet. Je remercie ensuite tous les membres du laboratoire et du service pour leur accueil et les bonnes relations que nous avons entretenues. J'ai passé de très bons moments au sein de cette équipe et en garde de très bons souvenirs. Je remercie enfin l'ensemble des membres du LULI, et plus particulièrement les membres de l'équipe « PHYHDEL ».

Plus personnellement, je remercie Kevin Glize, Vincent Dervieux, Cédric Neuville, Noémie Jourdain et Fabien Raphel pour leur bonne humeur, leur soutien et leur amitié.

Je remercie enfin toutes les personnes intéressées par mon travail, en espérant qu'elles puissent trouver dans ce manuscrit des explications utiles à leurs propres recherches.

Table des matières

1	Introduction	5
2	Modélisation semi-empirique des équations d'état tabulées	15
2.1	Introduction	16
2.2	Structure de l'équation d'état	17
2.3	Contributions ioniques	19
2.3.1	Phase solide : le modèle de Debye	20
2.3.2	Température de fusion : la loi de Lindemann	24
2.3.3	Phase fluide : le modèle de Cowan	24
2.4	Contributions électroniques	26
2.4.1	Modèle de Thomas-Fermi	27
2.4.2	Cas des mélanges	29
2.4.3	Prise en compte des effets dus aux liaisons chimiques	31
2.5	Modifications de l'équation d'état	32
3	Simulations de dynamique moléculaire quantique	37
3.1	Introduction	38
3.2	La dynamique moléculaire	39
3.2.1	Généralités	39
3.2.2	Mise en oeuvre de la dynamique moléculaire	40
3.2.2.1	Algorithme d'intégration temporelle	40
3.2.2.2	Conditions aux limites périodiques	41
3.2.3	Calcul des propriétés physiques des systèmes simulés	42
3.2.3.1	Propriétés thermodynamiques	42
3.2.3.2	Propriétés structurales	43
3.3	La théorie de la fonctionnelle de la densité	45
3.3.1	Formulation exacte de la théorie de la fonctionnelle de la densité	46

3.3.2	Détermination de la fonctionnelle universelle de la densité	47
3.3.2.1	Formulation statistique de Thomas-Fermi	47
3.3.2.2	Formulation de Kohn-Sham	49
3.3.3	Approximations introduites pour la résolution des équations de Kohn-Sham	53
3.3.3.1	Choix d'une fonctionnelle d'échange et corrélation	53
3.3.3.2	Traitement des interactions électron-ion	54
3.3.3.3	Représentation numérique des fonctions d'ondes dans le formalisme PAW	56
4	Application de la QMD au calcul de la courbe froide et de l'Hugoniot	59
4.1	Introduction	60
4.2	Caractéristiques des simulations	60
4.2.1	Matériaux ablateurs	60
4.2.2	Conditions de calcul de la dynamique moléculaire quantique	61
4.2.3	Évolution des grandeurs thermodynamiques au cours de la simulation	63
4.3	L'isotherme à 300 K de l'ablateur CHO	64
4.3.1	Méthode de calcul	65
4.3.2	Comparaison avec les mesures expérimentales	68
4.3.3	Modélisations analytiques pour une utilisation dans les équations d'état tabulées	72
4.3.3.1	Équations d'état paramétriques	73
4.3.3.2	Comparaison avec les modèles analytiques utilisés dans les tables d'équation d'état	75
4.3.4	Effet de l'oxygène sur l'isotherme à 300 K de l'ablateur CHO	78
4.4	L'Hugoniot principale de l'ablateur CHO	82
4.4.1	Méthode de calcul	83
4.4.2	Comparaison avec l'équation d'état tabulée	86
4.4.3	Modification de la contribution ionique dans le modèle QEOS	88
4.5	Analyse de l'ablateur CHOSi	94
5	Méthodes expérimentales	99
5.1	Objectifs	100
5.2	Les ondes de choc	101
5.2.1	Définition d'une onde de choc	101
5.2.2	Caractéristiques de la matière comprimée par une onde de choc	102

5.2.3	Propagation d'une onde de choc à l'interface entre deux milieux	107
5.3	La désadaptation d'impédance	109
5.3.1	Principe	110
5.3.2	Calcul de l'isentrope de détente	111
5.4	La création d'une onde de choc avec un laser	120
5.4.1	Absorption et transport de l'énergie laser	120
5.4.2	Expansion du plasma et création du choc	123
5.4.3	Les installations laser LULI2000 et GEKKO XII	123
5.5	Les diagnostics optiques	124
5.5.1	Diagnostic actif : interférométrie VISAR	125
5.5.1.1	Principe	125
5.5.1.2	Détermination de la vitesse de choc	130
5.5.1.3	Détermination de la réflectivité	133
5.5.2	Diagnostic passif : mesure de l'émission propre	138
5.5.2.1	Principe	138
5.5.2.2	Calibration absolue	140
5.5.2.3	Calibration semi-absolue	143
5.6	Le dimensionnement des cibles	144
6	Mesures d'équation d'état des plastiques CHO et CHOSi	153
6.1	Objectifs	154
6.2	Résultats expérimentaux du CHO	156
6.2.1	Détermination de la vitesse de choc	156
6.2.2	Évolution de (P, ρ) le long de l'Hugoniot	160
6.2.3	Détermination de la réflectivité et de la température	162
6.3	Résultats expérimentaux du CHOSi	167
6.3.1	Détermination des états (P, ρ) sur l'Hugoniot	167
6.3.2	Détermination de la Réflectivité et de la température	172
6.4	Comparaison des données du CHO et du CHOSi	176
6.4.1	Propriétés thermodynamiques	176
6.4.2	Propriétés optiques	178
7	Conclusion	183

Bibliographie

189

Depuis l'avènement de l'ère industrielle au milieu du XIX^e siècle, l'humanité ne cesse d'accroître sa consommation en énergie, notamment d'origine électrique. En outre, le réchauffement climatique, lié en grande partie à l'utilisation d'énergies fossiles, rend aujourd'hui plus que jamais nécessaire de trouver une nouvelle source d'énergie à la fois propre et sûre. La fusion thermonucléaire contrôlée est une solution envisagée et fait l'objet de nombreux travaux de recherche à travers le monde.

La fusion thermonucléaire contrôlée

L'objectif de la fusion thermonucléaire contrôlée est de recréer sur la Terre les réactions nucléaires se produisant à l'intérieur des étoiles. Pour cela, il faut amener un combustible composé d'éléments légers à fusionner. La réaction de fusion couramment envisagée fait intervenir le deutérium (D) et le tritium (T), deux isotopes de l'hydrogène. Cette réaction deutérium-tritium (D-T) donne naissance à un noyau d'hélium-4, qui possède une énergie de liaison élevée de 3,52 MeV, et à un neutron de 14,06 MeV.

Reproduire des réactions de fusion auto-entretenues sur Terre est un challenge à la fois scientifique et technologique. Un plasma doit être formé et porté à des températures et des densités très élevées. Ces conditions doivent ensuite être maintenues pendant un temps suffisamment long pour obtenir un rendement important. Dans le cas où l'on considère que le mélange D-T produit des réactions de fusion à partir d'une température de 10 keV, la valeur de la densité ionique n_{ion} à atteindre, et le temps τ pendant lequel cette densité doit être maintenue sont définis par le critère de Lawson [1] :

$$n_{\text{ion}} \tau > 2 \times 10^{14} \text{ [s/cm}^3\text{]} \quad (1.1)$$

Suivant ce critère, deux voies ont été envisagées pour créer un plasma dans ces conditions extrêmes : la première utilise un confinement magnétique, la seconde un confinement inertiel. Le confinement

magnétique maintient un plasma à des densités supérieures à 10^{14} ions par cm^3 , pendant des temps de l'ordre de la seconde [2]. Dans cette thèse, nous allons nous intéresser plus particulièrement à la fusion par confinement inertiel, pour lequel le plasma est fortement comprimé jusqu'à des densités de 10^{26} par cm^3 durant un instant très court ($\approx 50 - 100$ ps).

Le confinement inertiel

Les perspectives concernant l'utilisation d'un confinement inertiel ont commencé à voir le jour après l'invention du laser¹ dans les années 1960. Des équipes françaises, russes et américaines [3, 4, 5] ont alors eu l'idée d'utiliser des lasers de puissance pour obtenir les conditions expérimentales nécessaires à la création des réactions de fusion. En effet, ceux-ci permettent de délivrer une puissance importante sur un instant très court, et de la focaliser sur de petits volumes. Ils sont donc bien adaptés à la production des hautes densités d'énergies requises pour initier les réactions de fusion thermonucléaire. Les différents travaux de recherches menés jusqu'à présent dans cette voie ont conduit à la construction de deux installations laser de fortes énergies : le NIF² aux États-Unis et le LMJ³ en France.

Le procédé conduisant à la fusion par confinement inertiel consiste à initier des réactions auto-entretenues au coeur d'une capsule sphérique contenant le combustible deutérium-tritium. La capsule est accélérée en son centre de façon à porter le coeur du combustible à des densités et des températures suffisantes pour créer un point chaud central. Ce point chaud génère des particules alpha qui redéposent leur énergie dans le combustible adjacent et propagent les réactions de fusion thermonucléaire. Afin d'éviter une décompression du plasma qui diminuerait le rendement, le point chaud central est confiné par le reste du combustible plus dense et moins chaud. Le combustible se sépare ainsi en deux zones comme représentées sur la figure (1.1). En son centre, le point chaud de rayon R_h ne représente que quelques pourcents de la masse totale du combustible. Il possède une densité ρ_h et une température T_h qui doivent satisfaire aux conditions d'allumage. En périphérie, le combustible est dense et froid, d'épaisseur $R_c - R_h$, de densité $\rho_c > \rho_h$ et de température $T_c < T_h$.

Les conditions d'allumage du point chaud nécessitent d'atteindre une température supérieure à 120 MK, et une densité surfacique $\rho_h R_h$ supérieure à $0,4 \text{ g/cm}^2$ [6]. Cette dernière condition contraint le volume de combustible à allumer et la densité à laquelle il doit être porté. Pour une quantité de combustible contenue dans une sphère de rayon $0,03 \text{ mm}$ environ, on estime qu'il est nécessaire d'atteindre des densités supérieures à 100 g/cm^3 . Il existe de la même façon une condition sur la vitesse d'implo-

1. Light Amplification of Stimulated Emission Radiation
 2. National Ignition Facility
 3. Laser Mégajoule

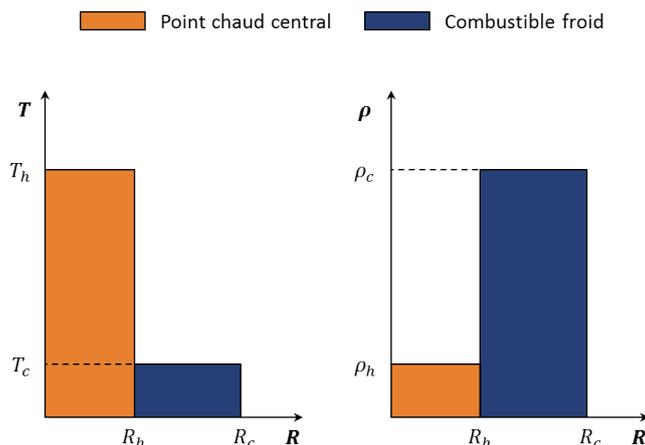


FIGURE 1.1 : Schéma de principe du modèle d'allumage par point chaud.

sion de la capsule. Lorsque celle-ci est trop faible, toute l'énergie apportée pour comprimer la capsule se dissipe trop rapidement pour former le point chaud. On estime que les vitesses d'implosion doivent être proches de 400 km/s.

Pour répondre aux contraintes liées à l'allumage, la capsule est de petite taille, de quelques millimètres de diamètre. Elle se compose d'un matériau ablateur sur sa partie externe, et d'un mélange deutérium et tritium sous phase cryogénique, puis gazeuse en son centre. Le matériau ablateur permet d'atteindre les vitesses d'implosion nécessaires à l'ignition. La capsule est ainsi mise en vitesse par l'ablation de sa couche externe, suite à l'absorption d'un rayonnement énergétique fourni par le laser. Sous l'effet de l'irradiation, la matière est chauffée brutalement et s'évapore. Par réaction, une pression d'ablation se crée (effet fusée) et lance une onde de choc centripète. Le choc se propage alors en avant du front d'ablation. Notons qu'une compression par choc engendre une augmentation importante d'entropie qui dissipe l'énergie sous forme de chaleur. Afin de confiner le point chaud, le combustible D-T cryogénique doit être fortement comprimé tout en restant froid. On minimise alors l'augmentation d'entropie en générant une succession de chocs dans la capsule.

Séquencement des chocs dans la capsule

La stratégie adoptée par le NIF et le LMJ est d'initier quatre chocs successifs. Cette succession de chocs est obtenue en profilant la loi d'irradiation laser et constitue une contrainte sur le dimensionnement de l'installation laser. La figure (1.2) présente le profil de puissance laser tel qu'utilisé sur le NIF [7]. Tout d'abord, un pic laser d'une puissance de 12 TW initie un premier choc. Ce choc se propage dans la matière non comprimée. Après un certain temps (≈ 10 ns), un second pic laser d'une puissance de

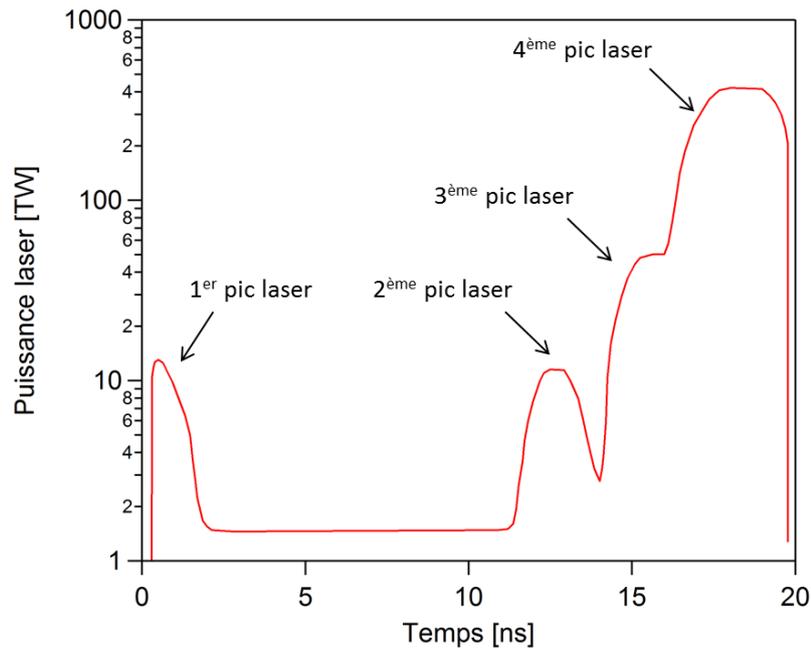


FIGURE 1.2 : Exemple de profil de puissance laser employé sur le NIF [7].

11,5 TW, puis un troisième de 50 TW initie un deuxième et un troisième choc dans la capsule. Ces chocs se propagent dans la matière pré-comprimée par le premier choc. Ils se déplacent plus rapidement et finissent par le rattraper. La coalescence des trois premiers chocs s'effectue quelques microns après le débouché du combustible D-T cryogénique de façon à comprimer efficacement ce dernier tout en chauffant le moins possible. Enfin, une rampe de montée en puissance initie un quatrième choc, d'une puissance maximale de 420 TW. Le quatrième choc arrive dans le combustible plus tard que les trois précédents (≈ 1 ns). Il entraîne avec lui l'implosion de la capsule et contribue à l'allumage du point chaud. La vitesse d'implosion doit alors être la plus élevée possible, typiquement de l'ordre de 400 km/s.

La figure (1.3) montre la trajectoire des quatre chocs dans l'ablateur et le D-T cryogénique d'une capsule envisagée pour le LMJ ou le NIF. Comme expliqué, les trois premiers chocs doivent coalescer quasiment au même instant en sortie du D-T cryogénique de façon à avoir le taux d'entropie le plus faible possible. Cependant, la coalescence doit avoir lieu assez tôt après le débouché de l'interface D-T cryogénique-gaz et ce, afin d'éviter une décompression trop importante du D-T cryogénique. Dans le cas des capsules NIF, les spécifications sur le séquençage des chocs ont été explicitées par D. Munro [8], puis par H. Robey [9] et O. Landen [7]. La chronométrie des chocs doit être précise à ± 50 ps, la vitesse des chocs à 2% près, et la position de la coalescence des trois premiers chocs doit avoir une incertitude inférieure au micromètre.

Notons également que la chronométrie des chocs et leurs vitesses dépendent de la nature de la

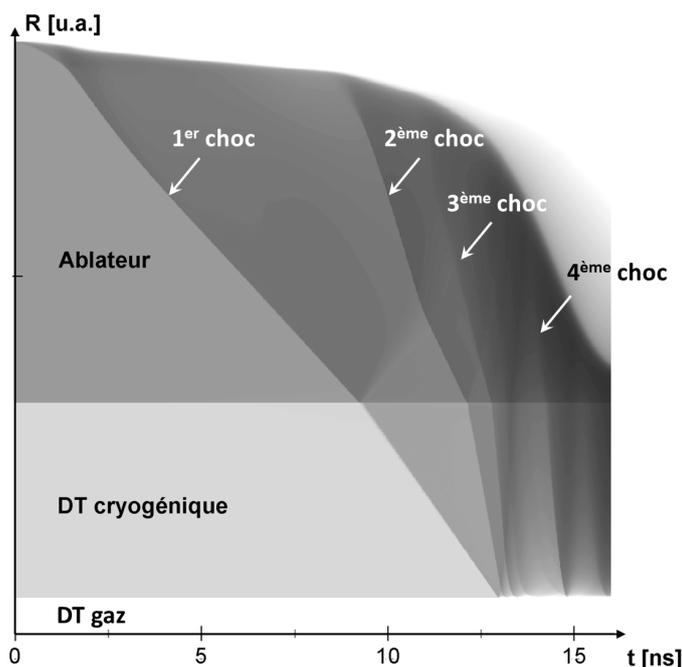


FIGURE 1.3 : Trajectoire lagrangienne des quatre chocs dans une cible de FCI [6].

capsule. Des simulations hydrodynamiques sont alors réalisées pour le dimensionnement de la capsule ainsi que du profil de puissance laser. Celles-ci font notamment intervenir les équations d'état de chaque matériau composant la capsule.

Schéma d'allumage de la capsule

Deux schémas sont couramment envisagés pour comprimer la capsule à l'aide d'un rayonnement. On distingue alors l'attaque directe de l'attaque indirecte [10]. Cette dernière est mise en oeuvre sur les grandes installations laser telle que le NIF et le LMJ.

Dans un schéma d'attaque directe, la capsule est directement irradiée par le rayonnement laser. Cette méthode présente le risque d'un éclairage inhomogène qui conduit au développement d'instabilités hydrodynamiques au niveau du front d'ablation et réduit l'efficacité de la compression.

Dans un schéma d'attaque indirecte, la capsule est insérée dans une cavité de numéro atomique Z élevé, communément appelée hohlraum. Les faisceaux du laser irradient les parois interne de la cavité. Du rayonnement X est alors produit et fournit une compression uniforme de la capsule sur toute sa surface. Le principe de l'attaque indirecte est présenté sur la figure (1.4).

Lors de l'interaction entre le laser et les parois internes du hohlraum, un plasma est créé en surface. L'énergie laser est alors absorbée, puis une partie est réémise sous forme de rayonnement X. L'absorp-

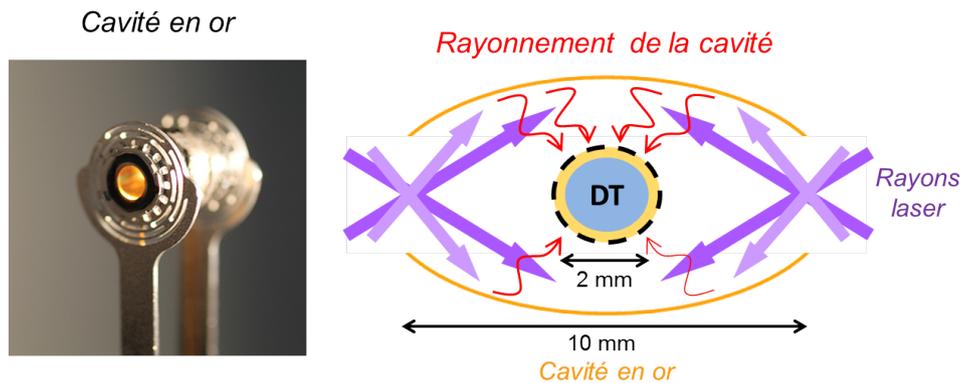


FIGURE 1.4 : Représentation d'une capsule dans un schéma d'attaque indirecte. Elle est composée d'un ablateur entourant le combustible D-T, et est insérée dans une cavité en or. L'interaction des faisceaux laser avec les parois de la cavité permet de générer un rayonnement X, capable de comprimer de façon uniforme la capsule contenant le combustible à imploder.

tion et la conversion de l'énergie laser sont d'autant plus importantes que la longueur d'onde du laser est faible et que le numéro atomique du matériau constituant la paroi est élevé. Des matériaux lourds comme l'or ($Z = 79$) ou l'uranium ($Z = 92$) sont ainsi utilisés. La cavité est ensuite remplie avec un gaz d'éléments légers (généralement un mélange d'hydrogène-hélium) ce, afin de limiter la détente des parois qui entraînerait le déplacement des surfaces émissives X et créerait des inhomogénéités d'irradiation.

Notons également que l'interaction laser-plasma se traduit par l'apparition d'instabilités paramétriques. Celles-ci entraînent la rétrodiffusion du laser et impliquent une perte d'énergie. De plus, elles engendrent un rayonnement X dur, comme celui provenant de la bande M de l'or. Ce rayonnement pénètre en profondeur dans la capsule et préchauffe le combustible D-T cryogénique. Ce phénomène augmente l'entropie et favorise la croissance des instabilités hydrodynamiques qui réduisent l'efficacité globale de l'implosion.

Les matériaux ablateurs

Les matériaux légers comme les plastiques (CHO) non dopés et dopés avec des éléments de Z moyen, comme le germanium (Ge) ou le silicium (Si), sont des ablateurs envisagés pour les capsules de FCI. Leurs faibles densités initiales permettent d'obtenir de grandes vitesses d'ablation, ce qui réduit le développement d'instabilités hydrodynamiques de type Rayleigh-Taylor [10] au niveau du front d'ablation.

Dans le schéma d'attaque directe, des recherches sur les plastiques bromés [11] et dopés au germanium et au silicium [12, 13] ont montré que la présence d'atomes de Z moyens inclus dans l'ablateur

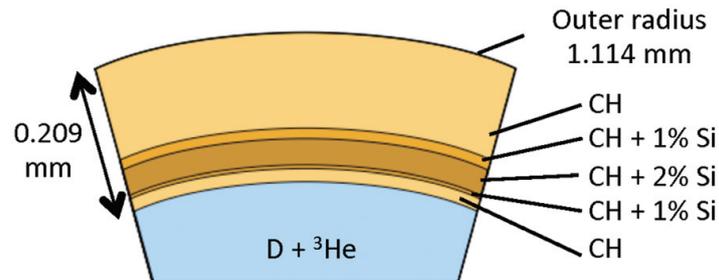


FIGURE 1.5 : Dimensionnement d'une capsule d'étude de FCI développé pour le NIF utilisant un gradient de dopant au silicium dans son profil radial [14].

plastique réduit l'empreinte du laser et crée un front d'ablation radiatif devant le front d'ablation. Ces deux mécanismes augmentent la vitesse d'ablation et adoucissent le profil de densité du plasma d'éjection stabilisant le front d'ablation.

Dans un schéma d'attaque indirecte, l'utilisation de plastiques dopés permet également d'absorber une partie du rayonnement X dur de la cavité et protège les couches internes de la capsule du préchauffage. Cependant, ces ablateurs ont une densité supérieure à celle d'un plastique non dopé. La vitesse du front d'ablation est alors réduite et le profil de densité plus raide, ce qui favorise le développement des instabilités de Rayleigh-Taylor ablatives [10]. Pour remédier à ce problème, on utilise un gradient de dopant tel qu'illustré sur la figure (1.5). La couche externe est composée de plastique non dopé d'une épaisseur d'environ 140 μm permettant de maximiser les vitesses d'implosion et de stabiliser le front d'ablation. Différentes couches de plastique dopé au silicium CH(Si) se succèdent ensuite avec un taux de Si en pourcentage atomique croissant dans un premier temps, puis décroissant, de façon à maintenir une couche de plastique non dopé en contact avec le combustible cryogénique. Les couches les plus dopées absorbent le rayonnement X dur et compriment la couche non dopée en contact avec le combustible de manière à minimiser le saut de densité. Cette structuration de la couche d'ablateur permet ainsi de protéger le combustible D-T du préchauffage tout en minimisant les instabilités hydrodynamiques.

Des capsules basées sur ce principe ont été développées par des équipes américaines [15, 16, 17, 18, 19], et françaises [20]. Tout d'abord, les dimensionnements ont introduit du plastique dopé au germanium (CHOGe). Cependant, les premières expériences sur le NIF n'ont pas permis d'atteindre les conditions d'allumage de la capsule, les vitesses d'implosion étant de 25% inférieures aux valeurs requises [14]. Par la suite, d'autres dimensionnements ont été entrepris à partir du plastique dopé au silicium (CHOSi). Le seuil d'absorption de cet élément chimique est à une énergie plus élevée que le germanium (figure 1.6). La part de rayonnement thermique qui atteint le front d'ablation est alors plus importante. De plus grandes vitesses d'implosion sont ainsi produites dans du CHOSi bien que ces propriétés d'absorption vis-à-vis de la bande M de l'or soient identiques au CHOGe.

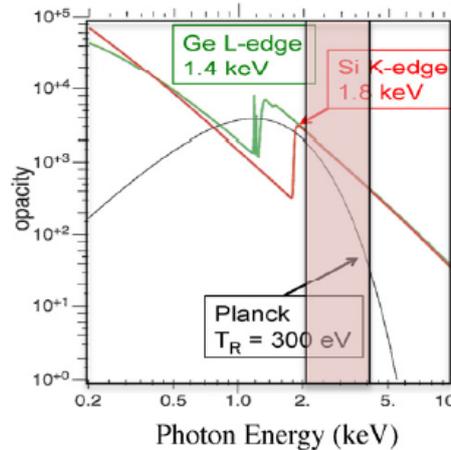


FIGURE 1.6 : Comparaison des opacités du CHOGe (en vert) et du CHOSi (en rouge) issues de [21]. La zone en rouge correspond au rayonnement X dur de la bande M de l'or produit par la cavité. Le seuil d'absorption de la couche K du silicium y est plus proche que celui de la couche L du germanium. Cela augmente la part du rayonnement thermique qui atteint le front d'ablation.

Les équations d'état

Parmi les nombreux paramètres qui doivent être maîtrisés durant l'implosion d'une capsule de FCI, nous allons nous intéresser aux équations d'état des matériaux ablateurs. Celles-ci sont utilisées sous forme tabulée dans les codes hydrodynamiques pour dimensionner les expériences de fusion par confinement inertiel. De récentes études ont notamment montré leur importance sur la chronométrie des chocs [9, 22], ainsi que sur la croissance des instabilités hydrodynamiques prédite par ces codes [23, 24].

Les équations d'état tabulées sont construites de façon à décrire un domaine très étendu du diagramme de phase. Plusieurs modèles analytiques sont alors utilisés et assemblés. Ces modèles décrivent chacun une région spécifique du diagramme de phase. Des méthodes d'interpolations sont ensuite appliquées pour décrire les régions intermédiaires.

Nous allons nous intéresser à une région restreinte du diagramme de phase, appelée la matière dense et tiède que l'on délimitera par des températures comprises entre 1 et 100 eV et des densités comprises entre 10^{-2} et 10 fois la densité standard. Ce régime de plasma est difficile à étudier puisqu'il combine des aspects de matière chaude, tels que l'ionisation ou le comportement fluide, et des aspects de matière froide, comme la dégénérescence des électrons. De plus, il se trouve à la frontière des différentes modélisations théoriques. Aucun des modèles implémentés dans les tables ne permet de le décrire précisément. Des interpolations et des corrections semi-empiriques sont alors utilisées mais ne fournissent qu'une estimation approchée des propriétés thermodynamiques. Des données expérimentales et numériques sont alors nécessaire pour corriger les équations d'état tabulées dans ce régime.

Plusieurs études expérimentales ont ainsi été réalisées sur les matériaux ablateurs. Elles ont fourni des mesures le long de l'Hugoniot principale⁴ portant sur la pression, la densité, et la température, ainsi que sur la réflectivité du front de choc. La plupart de ces expériences ont porté sur le polystyrène commercial [25, 26, 27, 28] et le plastique bromé [29]. Des mesures ont récemment été effectuées sur des matériaux plus représentatifs des ablateurs des capsules de FCI [30, 31].

En parallèle, le développement des supercalculateurs a permis une meilleure description de la matière dense et tiède par des méthodes *ab initio*. Celles-ci peuvent être utilisées dans un régime où l'expérience est difficile pour ajouter des données sur lesquelles adapter les modèles analytiques. Dans le cas des ablateurs plastiques, des simulations de dynamique moléculaire quantique ont produit des données d'équation d'état et ont permis le calcul des coefficients de transport le long d'isochores [32, 33], ainsi que sur l'Hugoniot principale [34, 35], et sur une région étendue du diagramme de phase [36, 37, 38]. Ces simulations permettent également le calcul spécifique de la réflectivité optique qui a été appliqué à différents matériaux [39, 40, 41, 42]. Ces prédictions ont pu être directement comparées aux résultats expérimentaux, et ont donné des informations sur les propriétés électroniques des matériaux étudiés.

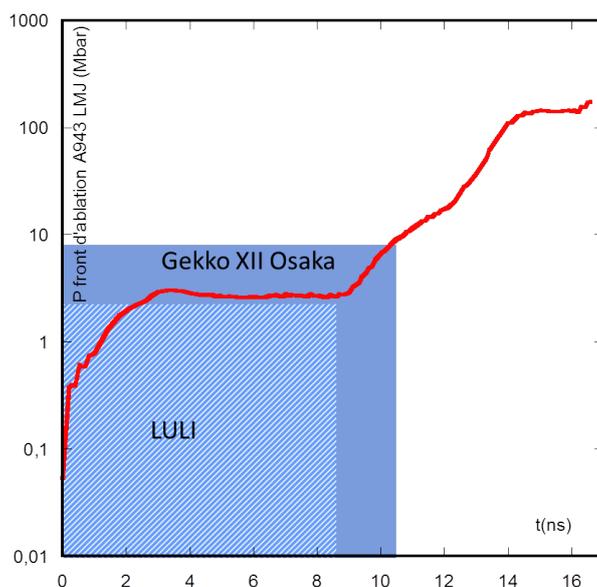


FIGURE 1.7 : *Pression au front d'ablation dans une capsule LMJ. Les zones hachurées montrent les domaines accessibles sur les installations LULI2000 et GEKKO XII utilisées dans le cadre de ce travail de thèse.*

4. L'Hugoniot représente les états thermodynamiques atteints lors d'une compression par choc. Plus de détails seront donnés dans la suite du manuscrit.

Les objectifs de la thèse

Ce travail s'inscrit dans la continuité des travaux antérieurs sur les ablateurs plastiques. Nous nous sommes particulièrement intéressés à deux matériaux ablateurs synthétisés pour les capsules du Laser Mégajoule : le plastique non dopés (CHO) et le plastique dopé avec 2,4% de silicium (CHOSi).

L'objectif principal de ce travail est d'améliorer la modélisation semi-empirique utilisée dans les tables d'équations d'état. Pour ce faire, nous nous sommes concentrés sur un domaine restreint du diagramme de phase qui peut être atteint sur des installations laser de tailles moyennes. Ce domaine se caractérise par des pressions de quelques mégabars et des températures de quelques électronvolts. Il est pertinent vis-à-vis de la fusion par confinement inertiel puisqu'il correspond aux conditions atteintes lors de la première phase de l'impulsion laser (figure 1.7).

Tout d'abord, nous avons défini un modèle d'équation d'état tabulée pour les ablateurs plastiques. Notre choix s'est concentré sur le modèle QEOS [43] qui est un modèle de référence simple d'utilisation. Qui plus est, il est entièrement analytique, paramétrable et donc facilement modifiable.

Ensuite, nous avons utilisé la dynamique moléculaire quantique pour obtenir des états thermodynamiques dans le régime d'étude. Cette méthode permet de simuler un ensemble d'atomes en interaction sans aucune hypothèse sur l'état du système ; les forces interatomiques étant déterminées par un calcul quantique des électrons. De plus, contrairement au modèle QEOS qui se base sur le concept d'atome moyen, les liaisons interatomiques peuvent être décrites. Cette méthode constitue ainsi un bon moyen d'analyse des équations d'état.

Nous avons commencé par construire une courbe froide qui a été intégrée au modèle QEOS. Nous avons ensuite construit des courbes d'Hugoniot qui décrivent les états atteints lors d'une compression par choc. Ces calculs ont notamment mis en avant l'influence de la dissociation sur la forme des courbes d'Hugoniot et diffèrent fortement des modèles d'équation d'état habituellement utilisés. Nous avons donc poursuivi la modification du modèle QEOS en intégrant la dissociation sous une forme analytique.

Enfin, des séries de mesures réalisées lors de trois campagnes expérimentales sur les installations LULI2000 à Palaiseau et GEKKO XII à Osaka au Japon nous ont permis de confirmer les résultats numériques, ce qui nous permettra en conclusion de formuler des perspectives d'évolution des études présentées ici.

Modélisation semi-empirique des équations d'état tabulées

Sommaire

2.1	Introduction	16
2.2	Structure de l'équation d'état	17
2.3	Contributions ioniques	19
2.3.1	Phase solide : le modèle de Debye	20
2.3.2	Température de fusion : la loi de Lindemann	24
2.3.3	Phase fluide : le modèle de Cowan	24
2.4	Contributions électroniques	26
2.4.1	Modèle de Thomas-Fermi	27
2.4.2	Cas des mélanges	29
2.4.3	Prise en compte des effets dus aux liaisons chimiques	31
2.5	Modifications de l'équation d'état	32

2.1 Introduction

Des codes hydrodynamiques sont utilisés pour dimensionner les expériences de fusion par confinement inertiel. Ces codes utilisent des équations d'état tabulées pour chaque matériau composant une capsule de FCI. Ils fournissent une prédiction, en amont, des différents phénomènes physiques qui se produisent durant l'implosion de la capsule et une interprétation, en aval, des résultats expérimentaux obtenus. Parmi les phénomènes étudiés, la chronologie des chocs et la croissance des instabilités hydrodynamiques sont sensibles aux équations d'état utilisées par les codes. Par exemple, T. Boehly [22] a montré que l'équation d'état du deutérium cryogénique impacte directement la chronologie des chocs prédits par un code hydrodynamique 1D. Pour cela, des simulations utilisant trois équations d'état différentes ont été comparées à des mesures de vitesses de choc. De plus, D. Clark [23] a montré que l'équation d'état de l'ablateur affecte la croissance des instabilités hydrodynamiques prédites par les codes. En particulier, il a mis en avant l'effet sur ces instabilités des écarts en densité sur l'Hugoniot principale, dans un régime de pression entre 0 et 10 Mbar. Une courbe d'Hugoniot plus compressible entraîne une croissance plus importante des instabilités hydrodynamiques.

Les équations d'état tabulées des ablateurs doivent être construites sur un domaine très étendu, typiquement pour des densités comprises entre 10^{-4} et 10^4 fois la densité solide, et des températures comprises entre 0 et 10^9 Kelvin. Cette contrainte provient du schéma d'implosion de la capsule, au cours duquel la matière se transforme et passe par plusieurs états thermodynamiques. Différents modèles théoriques, décrivant chacun une région du diagramme de phase, sont alors assemblés. Ces modèles font directement intervenir des paramètres expérimentaux, ou bien sont ajustés afin de restituer des mesures. On parle alors d'équations d'état semi-empiriques. Des méthodes d'interpolation sont utilisées pour assembler les différents modèles.

Parmi les équations d'état tabulées existantes, les tables SESAME et QEOS¹ peuvent être utilisées dans les codes hydrodynamiques. Les tables SESAME [44] ont été développées au Los Alamos National Laboratory à partir des années 1970. Elles constituent une bibliothèque d'équations d'état recensant de nombreux matériaux et utilisent des modèles paramétrés par des données expérimentales. L'équation d'état 7592 du polystyrène est la table SESAME qui se rapproche le plus des ablateurs plastiques. Cependant, tout comme l'ensemble des tables SESAME, elle n'est pas paramétrable. Elle doit être prise telle quelle, sans possibilité de modification. À l'inverse, les tables QEOS sont basées sur un modèle qui fournit une méthode pour construire l'équation d'état tabulée de n'importe quel mélange. Ce modèle a été proposé par R. More en 1987 [45]. Il est entièrement analytique et paramétrable. C'est

1. Quotidian Equation Of State

un modèle simple d'utilisation, qui ne dépend que de la masse molaire atomique A et de la charge Z des éléments chimiques. Dans le cas des matériaux plastiques qui sont des mélanges, le modèle QEOS est paramétrable par le $\langle A \rangle$ et le $\langle Z \rangle$ moyen, c'est là qu'il est particulièrement intéressant pour décrire un mélange. Nous nous servons donc de ce modèle comme référence pour le comparer aux simulations de dynamique moléculaire quantique et aux expériences qui seront présentées dans les chapitres suivants.

Dans la section 2.2, nous expliquerons la façon dont sont construites les équations d'état tabulées dans le modèle QEOS. Dans les sections suivantes, nous détaillerons les modèles théoriques introduits dans ces tables. En particulier, nous décrirons les modèles utilisés pour le calcul des propriétés ioniques (section 2.3), et électroniques (section 2.4). Nous serons ainsi amenés à expliquer la façon dont nous modifierons les équations d'état tabulées des ablateurs étudiés (section 2.5).

2.2 Structure de l'équation d'état

Afin de comprendre la méthode introduite dans le modèle QEOS pour construire une équation d'état tabulée, nous allons définir certaines propriétés d'un système thermodynamique.

Définitions : Une équation d'état d'un système à l'équilibre thermodynamique est une relation entre différentes grandeurs physiques (appelés variables d'état) qui déterminent son état. Il peut s'agir par exemple d'une relation entre sa température T , sa pression P et son volume V .

Un potentiel thermodynamique peut être défini, à partir de certaines variables d'état. La connaissance de ce potentiel permet d'obtenir l'ensemble des grandeurs physiques du système. Il existe différents potentiels thermodynamiques, qui correspondent aux différents jeux de variables d'état utilisés. En effet, bien qu'il existe une multitude de variables d'état, toutes ne sont pas nécessaires à la description de son état. On détermine ainsi un jeu de variables *indépendantes*, à partir desquelles les autres variables seront calculées. Le choix des variables d'état *indépendantes* conditionne celui du potentiel thermodynamique. Par exemple, on associe à la densité massique ρ et la température T , l'énergie libre de Helmholtz F , qui vérifie les relations :

$$F(\rho, T) = E(\rho, T) - TS(\rho, T), \quad (2.1)$$

$$dF = \frac{P}{\rho^2} d\rho - SdT. \quad (2.2)$$

L'énergie libre est définie à partir de l'énergie interne E du système, et de son entropie S . De la différen-

tielle de F (relation (2.2)), nous pouvons déduire la pression et l'entropie du système, telles que :

$$P(\rho, T) = \rho^2 \left(\frac{\partial F}{\partial \rho} \right)_T, \quad (2.3)$$

$$S(\rho, T) = - \left(\frac{\partial F}{\partial T} \right)_\rho. \quad (2.4)$$

En injectant la relation (2.4) dans (2.1), nous obtenons une expression de l'énergie interne, sous la forme :

$$E(\rho, T) = -T^2 \frac{\partial}{\partial T} \left(\frac{F}{T} \right)_\rho. \quad (2.5)$$

Ainsi, toutes les quantités thermodynamiques, qui composent une équation d'état, sont calculées à partir de l'énergie libre pour une densité et une température donnée.

Cohérence thermodynamique : Pour s'assurer que les quantités thermodynamiques utilisées soient cohérentes entre elles, le potentiel thermodynamique doit vérifier la relation :

$$\frac{\partial^2 F}{\partial \rho \partial T} = \frac{\partial^2 F}{\partial T \partial \rho} \quad (2.6)$$

Cela revient à vérifier que dF est une différentielle totale exacte. En développant, on obtient :

$$P - \rho^2 \left(\frac{\partial E}{\partial \rho} \right)_T = T \left(\frac{\partial P}{\partial T} \right)_\rho. \quad (2.7)$$

Cas du modèle QEOS : Afin de simplifier le calcul des équations d'état, le modèle QEOS de R. More suppose que les électrons et les ions sont des quantités additives. On sépare ainsi le potentiel thermodynamique en deux contributions, qui seront traitées séparément. Cette décomposition des contributions s'écrit pour l'énergie libre de Helmholtz d'un corps pur, en fonction de la densité ρ [g/cm³] et de la température T [K ou eV²], suivant :

$$F(\rho, T) = F_{\text{ion}}(\rho, T) + F_{\text{éle}}(\rho, T), \quad (2.8)$$

où $F_{\text{éle}}$ désigne l'énergie libre électronique, et F_{ion} l'énergie libre ionique. Par linéarité de l'opérateur dérivation, la décomposition des contributions électroniques et ioniques à l'énergie libre (2.8) est aussi valide pour la pression et pour l'énergie interne.

Chaque contribution est calculée dans le cadre d'un modèle d'atome moyen. Les modèles de Debye et de Cowan sont utilisés pour la contribution ionique. Le modèle semi-classique de Thomas-Fermi est utilisé pour la contribution électronique. Le système d'électrons est alors traité dans le champ de force central induit par les noyaux qui sont figés. En pratique, la résolution du système électronique s'effectue

2. 1 eV \approx 11604,5 K

dans un volume de rayon fini autour du noyau, c'est-à-dire dans une sphère ionique représentative des atomes du système.

Le principal inconvénient du concept d'atome moyen est l'absence de forces de liaisons entre les atomes. En particulier, le modèle de Thomas-Fermi surestime la pression, pour des densités et des températures proches des conditions normales. Par exemple, à la densité solide ($\rho = \rho_0$) et à température ambiante ($T_0 \cong 300$ K), la pression électronique est de l'ordre du Mbar, au lieu d'une valeur attendue de 1 bar ($= 10^{-6}$ Mbar). Une correction semi-empirique a alors été ajoutée à la décomposition des contributions (2.8). Elle est notée F_{corr} et définie à température ambiante T_0 pour corriger la courbe pression-densité sur l'isotherme à $T_0 = 300$ K. Cette courbe dépend des interactions interatomiques. Le fait de la restituer permet ainsi de prendre en compte les effets dus aux liaisons chimiques dans le modèle QEOS. L'équation (2.8) devient ainsi :

$$F(\rho, T) = F_{\text{ion}}(\rho, T) + F_{\text{éle}}(\rho, T) + F_{\text{corr}}(\rho). \quad (2.9)$$

De la même manière, cette décomposition des contributions s'écrit pour la pression, et pour l'énergie interne, comme :

$$P(\rho, T) = P_{\text{ion}}(\rho, T) + P_{\text{éle}}(\rho, T) + P_{\text{corr}}(\rho), \quad (2.10)$$

$$E(\rho, T) = E_{\text{ion}}(\rho, T) + E_{\text{éle}}(\rho, T) + E_{\text{corr}}(\rho). \quad (2.11)$$

Nous allons maintenant revenir sur chacun des modèles introduits dans les tables QEOS.

2.3 Contributions ioniques

Le diagramme de phase des ions est séparé en une phase solide et une phase liquide. Ces phases sont délimitées par une température de fusion, calculée à partir de la loi de Lindemann. Le calcul de la phase solide s'effectue à l'aide du modèle de Debye et le calcul de la phase liquide par le modèle de Cowan. La figure (2.1) présente le diagramme de phase de l'ablateur CHO, non dopé. Comme nous le verrons dans cette section, ce diagramme est entièrement caractérisé par trois paramètres qui sont des fonctions uniques de la densité massique ρ . Ces paramètres sont : la température de fusion T_{fusion} , la température de Debye Θ_D , et le coefficient de Grüneisen solide γ_S .

Expression des grandeurs thermodynamiques : On exprime les propriétés thermodynamiques à partir de grandeurs adimensionnées, calculées dans le cadre de l'atome moyen. L'énergie libre des ions F_{ion} , rapportée à la masse totale du mélange considéré, s'écrit alors :

$$\beta F_{\text{ion}}(\rho, T) = \frac{\mathcal{N}_{\text{sd}}}{A} f(\rho, T), \quad (2.12)$$

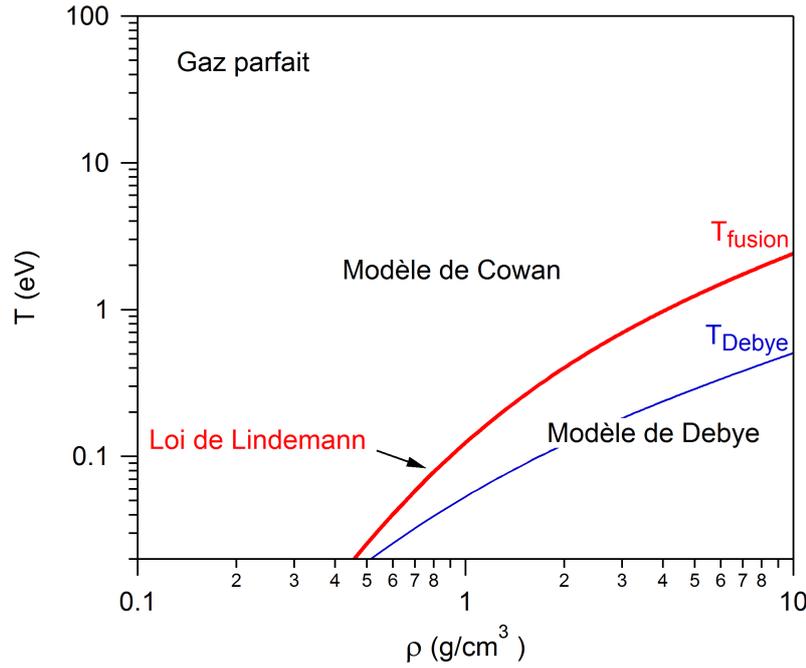


FIGURE 2.1 : Illustration du diagramme de phase des ions dans le modèle QEOS.

où, $f(\rho, T)$ est l'énergie libre adimensionnée, $\mathcal{N}_{\mathcal{A}}$ est le nombre d'Avogadro³, \bar{A} est la masse molaire atomique moyenne du mélange considéré, et $\beta = 1/k_{\text{B}}T$, avec k_{B} la constante de Boltzmann⁴. De la même façon, les contributions ioniques de l'énergie interne et de la pression s'écrivent sous la forme :

$$\beta E_{\text{ion}}(\rho, T) = \frac{\mathcal{N}_{\mathcal{A}}}{A} e(\rho, T), \quad (2.13)$$

$$\beta \frac{P_{\text{ion}}(\rho, T)}{\rho} = \frac{\mathcal{N}_{\mathcal{A}}}{A} p(\rho, T). \quad (2.14)$$

où, $e(\rho, T)$ et $p(\rho, T)$ sont, respectivement, l'énergie interne adimensionnée et la pression réduite.

2.3.1 Phase solide : le modèle de Debye

Dans la phase solide, on utilise le modèle de vibration de Debye pour le calcul des quantités thermodynamiques des ions. Ce modèle s'inscrit dans le cadre de l'approximation harmonique, ce qui permet d'exprimer simplement la densité des états de vibration, puis l'énergie et la pression correspondantes.

Approximation harmonique : La matière solide est assimilée à un réseau cristallin dont les sommets (les atomes) vibrent autour de leurs positions d'équilibre. On décrit le déplacement des atomes dans chaque direction par un oscillateur harmonique. L'étude des N_{ion} atomes constituant un cristal à trois dimensions se ramène alors à celle d'un système de $3N_{\text{ion}}$ oscillateurs harmoniques indépendants.

3. $\mathcal{N}_{\mathcal{A}} = 6,02214179 \times 10^{23} \text{ mol}^{-1}$

4. $k_{\text{B}} = 1,38065043 \times 10^{-16} \text{ erg/K}$

On suppose que les oscillations du réseau sont quantifiées et se comportent comme des quasi-particules : les phonons. Les propriétés thermodynamiques des ions sont alors déterminées par le spectre de fréquence⁵ des phonons. L'énergie libre moyenne du spectre de phonons⁶ s'écrit dans le cadre de l'approximation harmonique, sous la forme :

$$F = -k_B T \log(Z) = -U_0 + \frac{1}{2} \sum_{\mathbf{k}} h\nu(\mathbf{k}) + k_B T \sum_{\mathbf{k}} \log \left\{ 1 - e^{-h\nu(\mathbf{k})/k_B T} \right\} \quad (2.15)$$

où, h est la constante de Planck⁷, et $\nu(\mathbf{k})$ la fréquence d'un mode propre de vibration repéré par le vecteur d'onde \mathbf{k} . En pratique, on remplace les sommes par des intégrales, ce qui nous donne pour l'énergie libre :

$$F = E_0 + k_B T \int_0^{\nu_M} \log \left\{ 1 - e^{-h\nu(\mathbf{k})/k_B T} \right\} g(\nu) d\nu \quad (2.16)$$

avec, $E_0 = -U_0 + \frac{1}{2} \sum_{\mathbf{k}} h\nu(\mathbf{k})$ l'énergie du point zéro. Le nombre d'état de vibration ayant une fréquence comprise entre ν et $\nu + d\nu$ est noté $g(\nu)d\nu$. La fréquence maximum ν_M est donnée par la condition de normalisation : $\int_0^{\nu_M} g(\nu) d\nu = 3N_{\text{ion}}$.

La résolution de l'équation (2.16) nécessite de connaître le spectre de fréquence $g(\nu)$. Ce dernier peut être obtenu soit expérimentalement, par diffusion inélastique de rayons X ou de neutrons, soit de façon analytique, en introduisant des approximations supplémentaires. Dans le modèle QEOS, nous utiliserons l'approximation de Debye [46].

Approximation de Debye : Les quanta de vibrations du réseau cristallin obéissent à la relation de dispersion linéaire $\omega = \bar{v}\mathbf{k}$, dans laquelle \bar{v} est la vitesse moyenne du son, $\omega = 2\pi\nu$ est la pulsation, et \mathbf{k} le vecteur d'onde. Le nombre d'états de vibration ayant une pulsation comprise entre ω et $\omega + d\omega$ est :

$$g(\omega)d\omega = \omega(\mathbf{k})d\mathbf{k}, \quad (2.17)$$

où, $\omega(\mathbf{k})d\mathbf{k}$ est le nombre d'états dans l'espace des points \mathbf{k} contenus dans une coquille sphérique d'épaisseur $d\mathbf{k}$, entre \mathbf{k} et $\mathbf{k} + d\mathbf{k}$. Si l'on considère que le volume du cristal est égal au volume molaire V , et que le cristal contient $n\mathcal{N}_A$ atomes, où n est le nombre d'atomes par unité de volume, alors le spectre de vibration s'écrit dans le modèle de Debye, suivant :

$$g(\omega) = \frac{3nZV}{(2\pi)^3} 4\pi \frac{\omega^2}{\bar{v}^3}, \quad (2.18)$$

5. Le spectre de fréquence correspond à la courbe de la densité d'états de vibration par rapport à la fréquence de vibration du réseau.

6. Les phonons étant des bosons, on considère la distribution de Bose-Einstein dans les formules de physique statistique usuelles.

7. $h = 6,6262 \times 10^{-27}$ erg

avec,

$$\bar{v} = \sqrt[3]{3} \left(\frac{1}{v_p^3} + \frac{2}{v_s^3} \right)^{-\frac{1}{3}}, \quad (2.19)$$

où, v_p et v_s sont les vitesses du son longitudinale et transverse.

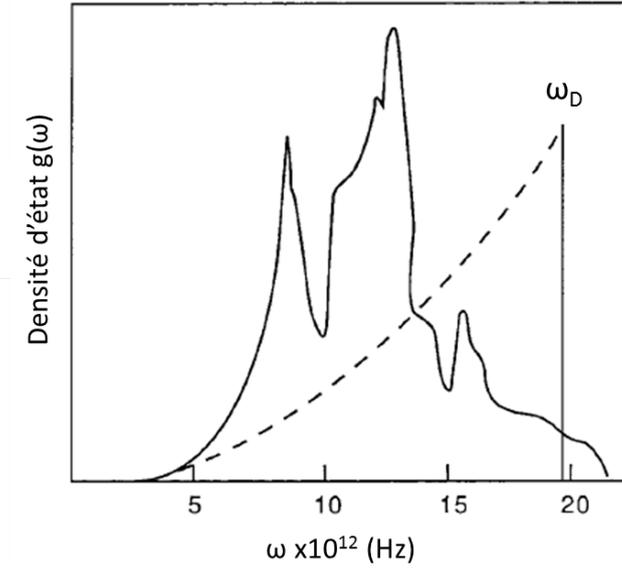


FIGURE 2.2 : Illustration d'un spectre de vibration (densité d'état) pour le periclase (courbe noire), comparé au spectre de Debye (courbe en pointillée noire), issue du livre de J-P Poirier [46].

Ce spectre a une forme parabolique, et possède une pulsation de coupure ω_D désignée, par abus de langage, fréquence de Debye. Les modes de fréquence possibles sont alors caractérisés par : $\omega(\mathbf{k}) \leq \omega_D$. On définit une température caractéristique associée à cette pulsation de coupure, appelée la température de Debye Θ_D , suivant : $k_B \Theta_D = \hbar \omega_D$. La figure (2.2) est un exemple du spectre de vibration des periclases dans le cas de l'approximation de Debye. On remarque que ce spectre (courbe en pointillés noirs) est différent d'un véritable spectre de vibration (courbe en trait plein noir). Il s'agit bien d'une approximation qui nous permet de calculer les états de vibrations dans un solide.

Expression de l'énergie dans le modèle de Debye : L'énergie interne adimensionnée s'écrit, sous la forme :

$$e_{\text{sol.}}(\rho, T) = 3D \left(\frac{\Theta_D(\rho)}{T} \right) + \frac{9}{8} \frac{\Theta_D(\rho)}{T}, \quad (2.20)$$

où, D est la fonction de Debye normalisée, définie par :

$$D(y) = \frac{3}{y^3} \int_0^y \frac{x^3 dx}{\exp(x) - 1}. \quad (2.21)$$

Notons que dans l'expression (2.20), le terme $9/8 k_B \Theta_D(\rho)$ représente l'énergie du point zéro de la vibration du réseau, correspondant à la contribution froide dans le modèle de Debye.

Calcul de la pression ionique : Ayant exprimé l'énergie vibrationnelle du solide dans le cadre de l'approximation de Debye, nous allons calculer la pression associée. Celle-ci est définie à partir de l'énergie libre, suivant :

$$p_{\text{sol.}}(\rho, T) = \rho \left(\frac{\partial f_{\text{sol.}}}{\partial \rho} \right)_T = \rho \left(\frac{\partial f_{\text{sol.}}}{\partial \Theta_D} \right)_T \left(\frac{\partial \Theta_D}{\partial \rho} \right)_T. \quad (2.22)$$

$f_{\text{sol.}}$ est la contribution des vibrations du réseau à l'énergie libre adimensionnée dans le modèle de Debye. Compte tenu de l'expression de l'énergie interne (équation (2.20)), on peut montrer que : $\partial f_{\text{sol.}} / \partial \Theta_D = e_{\text{sol.}} / \Theta_D$, ce qui introduit dans la relation (2.22), permet d'écrire la pression réduite comme :

$$p_{\text{sol.}}(\rho, T) = \rho \frac{e_{\text{sol.}}}{\Theta_D} \frac{\partial \Theta_D}{\partial \rho}. \quad (2.23)$$

On exprime alors la pression sous la forme d'une équation d'état de type Mie-Grüneisen :

$$p_{\text{sol.}}(\rho, T) = \gamma_s(\rho) e_{\text{sol.}}(\rho, T), \quad (2.24)$$

avec,

$$\gamma_s(\rho) = \frac{d \log \Theta_D(\rho)}{d \log \rho}. \quad (2.25)$$

$\gamma_s(\rho)$ est un coefficient de Grüneisen, qui caractérise le rapport de la pression thermique à l'énergie thermique du milieu. D'après cette définition du coefficient de Grüneisen, l'énergie thermique est équivalente à l'énergie d'un gaz de phonons, dans lequel les interactions électrons-phonons sont négligées. La contribution ionique de la phase solide est ainsi fixée dès lors que l'on donne une expression à la température de Debye, ou de manière équivalente, au coefficient de Grüneisen.

Utilisation dans le modèle QEOS : Dans le cadre du modèle de Debye, les tables QEOS utilisent une expression de l'énergie libre $f_{\text{sol.}}$, en fonction de la variable adimensionnée $u = \Theta_D(\rho)/T$. Celle-ci s'écrit pour $u \leq 3$, suivant :

$$f_{\text{sol.}}(u) = -1 + 3 \log(u) + \left(\frac{3u^2}{40} - \frac{u^4}{2240} \right), \quad (2.26)$$

et pour $u > 3$, suivant :

$$f_{\text{sol.}}(u) = \frac{9u}{8} + 3 \log(1 - e^{-u}) - \frac{\pi^4}{5u^4} + e^{-u} \left(3 + \frac{9}{u} + \frac{18}{u^2} + \frac{18}{u^3} \right). \quad (2.27)$$

La différentiation de $f_{\text{sol.}}$ nous fournit ensuite une forme analytique pour $e_{\text{sol.}}$:

$$e_{\text{sol.}}(u) = 3 \left(1 + \frac{u^2}{20} - \frac{u^4}{1680} \right), \quad (2.28)$$

pour $u \leq 3$, et :

$$e_{\text{sol.}}(u) = \frac{9u}{8} + \frac{3u}{e^u - 1} + \frac{3\pi^4}{5u^3} - ue^{-u} \left(3 + \frac{9}{u} + \frac{27}{u^2} + \frac{54}{u^3} + \frac{54}{u^4} \right) \quad (2.29)$$

pour $u > 3$. À partir de ces valeurs, on calcule la pression réduite $p_{\text{sol.}}$ suivant la relation (2.24).

2.3.2 Température de fusion : la loi de Lindemann

La transition entre le modèle solide et le modèle fluide est déterminée par la température de fusion $T_{\text{fusion}}(\rho)$. Une estimation de cette température est alors nécessaire. Dans le modèle QEOS, la relation de Lindemann [47] est utilisée pour assurer la cohérence thermodynamique de la contribution ionique de l'équation d'état. Cette relation s'écrit comme :

$$\frac{\rho^{2/3} T_{\text{fusion}}(\rho)}{\Theta_{\text{D}}^2} = \alpha, \quad (2.30)$$

où, α est une constante qui ne dépend que du matériau considéré.

Notons que la loi de Lindemann se base sur l'hypothèse qu'un solide devient liquide lorsque l'amplitude des vibrations des atomes autour de leurs positions d'équilibre devient plus grande qu'une certaine fraction de l'espacement du réseau cristallin [48]. L'évolution de la température de fusion comme fonction de la densité dépend ainsi du modèle utilisé pour calculer la température de Debye, ou de façon équivalente du coefficient de Grüneisen. En pratique, on intègre la relation (2.30) pour faire disparaître la constante α . La température de fusion s'exprime alors, comme :

$$T_{\text{fusion}}(\rho) = \frac{T_{\text{fusion},0}}{\Theta_{\text{D},0}^2} \left(\frac{\rho_0}{\rho} \right)^{2/3} \Theta_{\text{D}}(\rho)^2, \quad (2.31)$$

où, $T_{\text{fusion},0}$ et $\Theta_{\text{D},0}$ sont la température de fusion et la température de Debye obtenues à la densité solide du matériau ρ_0 .

2.3.3 Phase fluide : le modèle de Cowan

Le modèle analytique de Cowan permet de calculer les propriétés ioniques dans la phase fluide. Il correspond à un lissage semi-empirique qui fournit une interpolation entre deux limites thermodynamiques connues : l'énergie libre d'un gaz parfait monoatomique à haute température, et le modèle du solide de Debye à basse température. L'énergie calculée est purement thermique. Les énergies de Coulomb et de liaisons seront prises en compte dans les contributions électroniques.

Dans ce modèle, l'énergie interne adimensionnée et la pression réduite s'expriment, à partir du paramètre adimensionné $\omega = T_{\text{fusion}}(\rho)/T$, en fonction de la température de fusion T_{fusion} :

$$e_{\text{fluide}} = \frac{3}{2} + \frac{3}{2} \omega^{1/3}, \quad (2.32)$$

$$p_{\text{fluide}} = 1 + \frac{3}{2} \gamma_{\text{F}}(\rho) \omega^{1/3}. \quad (2.33)$$

On définit un coefficient de Grüneisen fluide γ_{F} , sensible au choix de la température de fusion T_{fusion} . Ce coefficient s'exprime, suivant :

$$\gamma_{\text{F}}(\rho) = \frac{d \log T_{\text{fusion}}(\rho)}{d \log \rho}. \quad (2.34)$$

Nom	Formule chimique	ρ_0 [g/cm ³]	c_0 [km/s]	γ_0	$\Theta_{D,0}$ [K]	$T_{\text{fusion},0}$ [K]
polyéthylène	(C ₂ H ₄) _n	0,954	2,166	0,739	-	408
polypropylène	(C ₃ H ₆) _n	0,904	2,137	-	-	444
polystyrène	(C ₈ H ₈) _n	1,044	1,890	-	258	513

TABLE 2.1 : Propriétés de polymères dans les conditions normales, issues des références [49, 50, 51].

Le premier terme des relations (2.32-2.33) correspond à l'énergie libre et à la pression d'un gaz parfait. Le deuxième terme s'identifie alors à une contribution d'excès, qui est un écart au modèle gaz parfait. À basse température, cette contribution tend vers le modèle du solide de Debye, et elle s'annule à haute température restituant ainsi la contribution du gaz parfait.

Expression de γ_F : On exprime la température de fusion en fonction de la température de Debye, grâce à la loi de Lindemann (équation (2.30)). Cela nous permet de relier le paramètre γ_F au coefficient de Grüneisen (équation 2.25), suivant :

$$3\gamma_S(\rho) = \frac{3}{2}\gamma_F(\rho) + 1. \quad (2.35)$$

La pression de la phase fluide s'écrit alors sous la forme :

$$p_{\text{fluide}} = 1 + (3\gamma_S(\rho) - 1)\omega^{1/3}. \quad (2.36)$$

Cette sensibilité des modèles de Debye et de Cowan par rapport au coefficient de Grüneisen sera utilisée, dans le chapitre 4, pour corriger les équations d'état des ablateurs.

Détermination du coefficient de Grüneisen γ_S : Pour exprimer l'énergie et la pression ionique, nous avons besoin de connaître la température de Debye, ainsi que la température de fusion et le coefficient de Grüneisen solide. Le modèle de Cowan donne une estimation de ces paramètres, à partir de la charge atomique moyenne \bar{Z} et de la masse atomique moyenne \bar{A} du mélange considéré. Pour l'ablateur plastique CHO non dopé, la charge et la masse atomique moyenne sont respectivement, $\bar{Z}_{\text{CHO}} = 3,26$ et $\bar{A}_{\text{CHO}} = 5,96 \text{ g/mol}^{-1}$.

On définit une variable adimensionnée pour la densité, suivant : $\xi = \rho/\rho_{\text{réf.}}$, où $\rho_{\text{réf.}}$ est une densité de référence, telle que $\rho_{\text{réf.}} = \bar{A}/9\bar{Z}^{0,3} \text{ g/cm}^3$. La température de Debye [eV] est calculée à partir de cette variable, suivant :

$$\Theta_D = \frac{1,68}{\bar{Z} + 22} \frac{\xi^{b+2}}{(1 + \xi)^2}, \quad (2.37)$$

où, $b = 0,6\bar{Z}^{1/9}$. D'après la définition du coefficient de Grüneisen solide (équation 2.25), celui-ci s'écrit comme :

$$\gamma_S(\rho) = b + \frac{2}{1 + \xi}, \quad (2.38)$$

et la température de fusion [eV], s'exprime à partir de la Loi de Lindemann, par :

$$T_{\text{fusion}}(\rho) = 0,32 \frac{\xi^{2b+10/3}}{(1 + \xi)^4}. \quad (2.39)$$

Ces formules, qui sont données sans justification ont été testées, a posteriori, sur différents éléments chimiques [45]. Bien que ne fournissant pas un calcul précis de $\Theta_D(\rho)$, $T_{\text{fusion}}(\rho)$, et $\gamma_S(\rho)$, elles donnent une bonne approximation de ces grandeurs. L'objectif du modèle QEOS est de fournir un calcul simple des équations d'état. Ces trois grandeurs sont alors utilisées comme des paramètres, dont l'objectif est le calcul des propriétés thermodynamiques des ions.

Pour l'ablateur CHO, ces paramètres sont estimés à la densité standard $\rho_0 = 1,07 \text{ g/cm}^3$, par : $\gamma_0 = 1,289$, $\Theta_{D,0} = 664 \text{ K}$, et $T_{\text{fusion},0} = 1576 \text{ K}$. Les valeurs introduites dans le modèle QEOS sont alors bien supérieures aux valeurs connues pour les polymères, détaillées dans le tableau (2.1). Nous vérifierons, dans les chapitres suivants, la précision du modèle QEOS.

Conclusions :

La contribution ionique à la pression totale et à l'énergie interne d'un mélange est, dans le modèle QEOS, entièrement déterminée à partir de la masse molaire atomique moyenne \bar{A} , et du numéro atomique moyen \bar{Z} du mélange considéré.

Le diagramme de phase est séparé en deux parties : une phase solide et une phase fluide. Le modèle de Debye est utilisé dans la première phase, le modèle de Cowan dans la seconde. La loi de Lindemann assure la transition entre ces deux modèles. Ces modèles sont paramétrés par : la température de Debye, la température de fusion et le coefficient de Grüneisen solide, eux-mêmes déterminés à partir de \bar{Z} et \bar{A} .

2.4 Contributions électroniques

La contribution électronique est calculée à l'aide du modèle semi-classique de Thomas-Fermi, appliqué à un atome isolé. Nous allons présenter les grandes lignes de ce modèle. Plus de détails sont disponibles dans les références [45, 52].

2.4.1 Modèle de Thomas-Fermi

Le plasma est vu comme étant un ensemble de cellules sphériques identiques, représentant chacune un atome. Les cellules sont supposées électroniquement neutres, avec une masse molaire atomique A . Elles contiennent Z électrons et un nucléon de charge Z . On modélise ces cellules par une sphère de Wigner-Seitz, de rayon :

$$R_{\text{WS}} = \left(\frac{3}{4\pi n_{\text{ion}}} \right)^{1/3} \quad (2.40)$$

où, $n_{\text{ion}} = \rho \mathcal{N}_{\text{A}} / A$ est la densité ionique totale, et \mathcal{N}_{A} le nombre d'Avogadro. Le rayon R_{WS} est alors directement fixé par la densité ρ et la masse molaire atomique A de l'élément considéré.

À l'intérieur des sphères atomiques, les électrons sont traités comme un gaz de Fermi dans un potentiel électrostatique auto-cohérent généré par la charge des particules. Au delà de la surface des sphères, l'environnement est décrit par un plasma neutre. Les contraintes imposées par l'environnement sont alors très simplifiées. Une évolution de ce modèle consiste à résoudre le problème dans une sphère atomique tout en supposant que la condition de neutralité soit donnée par le plasma dans son ensemble et non réduite à chacune de ses sphères. Il s'agit des modèles d'atomes moyen plongés dans un jellium [52]. Pour faciliter les calculs de la contribution électronique, nous utiliserons le modèle de Thomas-Fermi, proposé dans le modèle QEOS.

Ce modèle considère le gaz d'électrons comme localement idéal. On doit alors résoudre localement le problème d'un gaz d'électron idéal subissant l'effet d'un potentiel électrostatique, noté $V(r)$. À l'intérieur de la sphère de Wigner-Seitz, ce potentiel est déterminé en résolvant l'équation de Poisson :

$$\nabla^2 V = 4\pi e n(r) - 4\pi Z e \delta(r), \quad (2.41)$$

avec, $n(r)$ la densité électronique obtenue, dans le cas non relativiste, par la relation :

$$n(r) = c_1 (k_{\text{B}} T)^{3/2} F_{1/2} \left(-\frac{\mu + eV(r)}{k_{\text{B}} T} \right), \quad (2.42)$$

où, $c_1 = (1/2\pi^2)(2m/\hbar^2)^{3/2}$, et $F_{1/2}$ est l'intégrale de Fermi, donnée par :

$$F_{\nu}(x) = \int_0^{\infty} \frac{y^{\nu} dy}{1 + \exp(x+y)}. \quad (2.43)$$

La neutralité des sphères atomiques impose au potentiel électrostatique les conditions :

$$dV/dr = 0 \quad \text{lorsque} \quad r = R_{\text{WS}}, \quad (2.44)$$

$$V(r) \propto Ze/r \quad \text{lorsque} \quad r \rightarrow 0, \quad (2.45)$$

$$V(r) = 0 \quad \text{lorsque} \quad r = R_{\text{WS}}. \quad (2.46)$$

La résolution des équations (2.41) et (2.42) se fait suivant un schéma numérique. On obtient alors la valeur du potentiel électrostatique $V(r)$, et de la densité électronique $n(r)$ d'un atome, pour une condition de densité et de température imposées au système.

Expression de l'énergie interne et de la pression : À partir de $V(r)$ et de $n(r)$, on écrit l'énergie totale du système électronique comme la somme d'un terme d'énergie cinétique K , d'un potentiel de coulomb entre les électrons et le noyau U_{en} , ainsi que de l'interaction coulombienne entre électrons U_{ee} dans chaque cellule :

$$K = c_1(k_B T)^{5/2} \int_0^{R_{WS}} F_{3/2} \left(-\frac{\mu + eV(r)}{k_B T} \right) d^3 r, \quad (2.47)$$

$$U_{en} = - \int_0^{R_{WS}} \frac{Ze^2}{|r|} n(r) d^3 r, \quad (2.48)$$

$$U_{ee} = - \frac{e^2}{2} \int_0^{R_{WS}} \frac{n(r)n(r')}{|r-r'|} d^3 r d^3 r'. \quad (2.49)$$

L'énergie interne et la pression, de la contribution électronique d'une équation d'état QEOS, sont calculées, pour n'importe quel élément chimique Z , par les relations :

$$E_{\text{éle}}(Z, \rho, T) = (K + U_{en} + U_{ee}) \frac{\mathcal{N}_{\mathcal{A}}}{A}, \quad (2.50)$$

$$P_{\text{éle}}(Z, \rho, T) = n(R_{WS}) k_B T \frac{F_{3/2} \left(-\frac{\mu + eV(r)}{k_B T} \right)}{F_{1/2} \left(-\frac{\mu + eV(r)}{k_B T} \right)}. \quad (2.51)$$

Ces relations font uniquement intervenir, en plus de la densité et de la température, le numéro atomique Z et la masse molaire A de l'élément considéré.

Lois d'échelle : Une caractéristique importante du modèle de Thomas-Fermi est la possibilité de définir des lois d'échelle entre les éléments chimiques, qui relient les grandeurs thermodynamiques des électrons. L'énergie interne $E_{\text{éle}}(Z, \rho, T)$ et la pression $P_{\text{éle}}(Z, \rho, T)$ d'un élément chimique arbitraire, caractérisé par son numéro atomique Z et sa masse molaire atomique A , sont alors déterminées à partir de ces grandeurs calculées pour l'atome d'hydrogène ($A_1 = 1, Z_1 = 1$). On redimensionne les densités et les températures, suivant :

$$\rho_1 = \frac{\rho}{AZ} \quad \text{et} \quad T_1 = \frac{T}{Z^{4/3}}. \quad (2.52)$$

Les lois d'échelle s'écrivent comme :

$$E_{\text{éle}}(Z, \rho, T) = \frac{Z^{7/3}}{A} E_{\text{éle}}(Z_1, \rho_1, T_1), \quad (2.53)$$

$$P_{\text{éle}}(Z, \rho, T) = Z^{10/3} P_{\text{éle}}(Z_1, \rho_1, T_1). \quad (2.54)$$

Des relations similaires existent pour l'énergie libre et pour l'entropie, ainsi que pour toutes les autres grandeurs thermodynamiques.

Ces lois d'échelle s'appliquent uniquement aux contributions électroniques dans le modèle de Thomas-Fermi. Ainsi, le calcul de ces contributions dans le cas $Z = 1$ permet d'obtenir les propriétés électroniques de n'importe quel élément chimique. Cette caractéristique constitue le principal avantage pour l'utilisation du modèle de Thomas-Fermi dans une équation d'état tabulée.

Utilisation dans le modèle QEOS : Pour des raisons pratiques, le modèle QEOS utilise une tabulation de l'énergie libre électronique en fonction de la densité ρ et de la température T . Toutes les grandeurs thermodynamiques sont dérivées de cette tabulation. Du fait des lois d'échelle, le modèle de Thomas-Fermi ne nécessite que de calculer la table électronique de l'hydrogène.

2.4.2 Cas des mélanges

Le modèle, que nous venons de présenter, rend possible le calcul de la contribution électronique des équations d'état pour chaque élément chimique du tableau périodique. Cependant, certains matériaux, comme les ablateurs, sont constitués de plusieurs éléments. Une loi de mélange iso-pression électronique et iso-densité est alors utilisée pour traiter ces matériaux.

On considère un mélange composé de M éléments chimiques, qui seront indicés par j . La masse molaire atomique moyenne \bar{A} du mélange est connue, et s'exprime suivant :

$$\bar{A} = \sum_{j=1}^M x_j A_j, \quad (2.55)$$

avec x_j et A_j la fraction atomique et la masse molaire atomique de l'élément j dans le mélange.

La loi de mélange consiste à trouver les densités $\{\rho_j\}$ des éléments chimiques individuels, de façon à vérifier les conditions :

$$P_{\text{éle}}(Z_j, \rho_j, T) = \bar{P}, \quad (2.56)$$

$$\rho' = \rho, \quad (2.57)$$

avec,

$$\frac{\bar{A}}{\rho'} = \sum_{j=1}^M x_j \frac{A_j}{\rho_j}. \quad (2.58)$$

$P_{\text{éle}}(Z_j, \rho_j, T)$ est la pression électronique de l'élément j associé à la densité ρ_j . Cette pression est donnée directement par les tables Thomas-Fermi. \bar{P} et ρ' sont respectivement, la pression moyenne et la densité totale du mélange, pour un jeu de densité $\{\rho_j\}$. La résolution de ce système d'équations se fait suivant un schéma de résolution numérique.

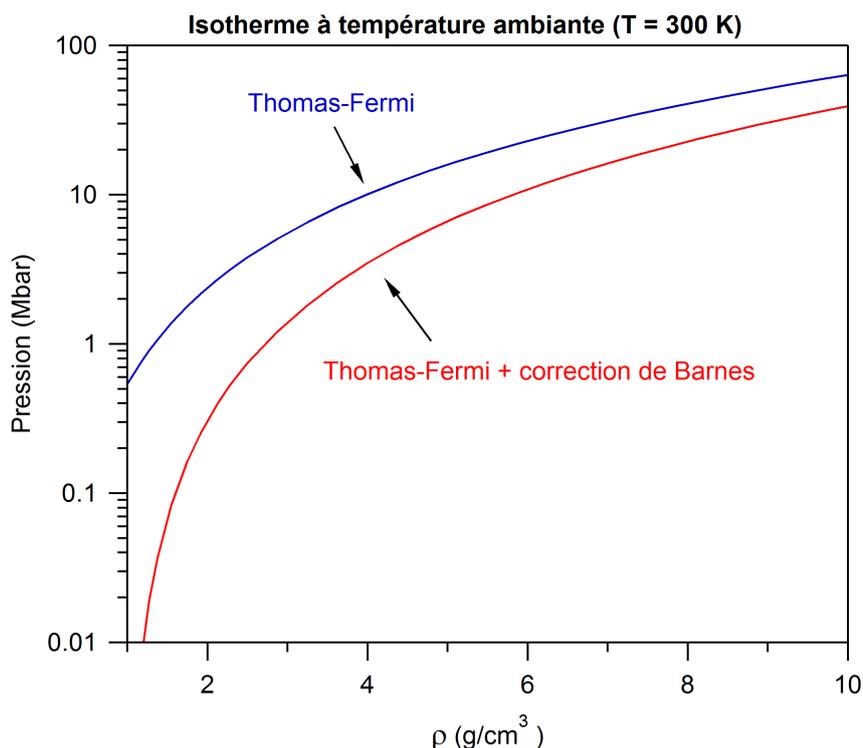


FIGURE 2.3 : Isotherme à température ambiante de l'ablateur CHO. La pression électronique, en bleue, a été calculée par le modèle de Thomas-Fermi, et la pression, en rouge, par le modèle de Thomas-Fermi avec application de la correction de Barnes.

On procède de la façon suivante :

1. Une proposition est faite sur la densité ρ_j des éléments individuels composant le mélange. On détermine alors la pression électronique $P_{\text{éle}}(Z_j, \rho_j, T)$ de chaque élément j .
2. On impose à chaque pression d'être égale à la valeur moyenne des pressions \bar{P} . Pour cela, on fait varier les densités $\{\rho_j\}$ jusqu'à ce que la relation (2.56) soit vérifiée. On obtient ainsi un nouveau jeu de densité.
3. On calcule ensuite la densité totale ρ' du mélange à cette pression. Si ρ' est différent de ρ alors, on fait varier les valeurs de ρ_j pour vérifier (2.57).
4. On réitère le cycle, jusqu'à ce que les conditions (2.56) et (2.57) soient vérifiées pour un jeu de densité $\{\rho_j\}$.

2.4.3 Prise en compte des effets dus aux liaisons chimiques

Le modèle de Thomas-Fermi produit une pression de l'ordre du mégabar à température nulle et à basse densité. En réalité, la matière froide à $T = 0$ K suppose une pression nulle à la densité solide ρ_0 . Afin d'obtenir une équation d'état correcte dans cette région, on ajoute une correction semi-empirique à la décomposition des contributions. Cette correction permet d'obtenir des valeurs cohérentes de l'isotherme à température ambiante. Cette isotherme, que l'on définit comme une courbe froide, permet de restituer les effets dus aux liaisons chimiques, non pris en compte dans le modèle d'atome isolé.

On choisit une correction semi-empirique de l'énergie interne de la forme :

$$E_{\text{corr}}(\rho) = E_0 \left\{ 1 - e^{b(1 - (\rho_0/\rho)^{1/3})} \right\}, \quad (2.59)$$

où, les constantes E_0 et b sont alors à déterminer. Dans le modèle QEOS, cette énergie est choisie comme étant indépendante de la température. Par conséquent, l'équation (2.59) donne aussi une correction à l'énergie libre de Helmholtz. Cette forme relativement simple a été introduite par Barnes [53] pour reproduire le terme attractif du potentiel de Morse. La correction semi-empirique s'écrit pour la pression comme :

$$P_{\text{corr}}(\rho) = \rho^2 \frac{dE_{\text{corr}}}{d\rho} = - \left(\frac{E_0 b \rho_0}{3} \right) \left(\frac{\rho}{\rho_0} \right)^{2/3} \exp b \left[1 - \left(\frac{\rho_0}{\rho} \right)^{1/3} \right]. \quad (2.60)$$

On exprime le module de compressibilité, par :

$$K_0 = \rho \left(\frac{\partial P_{\text{tot}}}{\partial \rho} \right)_{\rho_0, T_0} = \rho \left(\frac{\partial P_{\text{ion}}}{\partial \rho} + \frac{\partial P_{\text{éle}}}{\partial \rho} \right)_{\rho_0} - (b+2) \frac{E_0 b \rho_0}{9}. \quad (2.61)$$

Dans le cadre de la correction de Barnes, les constantes E_0 et b sont calculées, à partir du volume d'équilibre et du module de compressibilité, aux conditions normales de température et de pression (CNTP), de sorte que $P_{\text{tot}}(\rho, T_0) = P_{\text{ion}}(\rho, T_0) + P_{\text{éle}}(\rho, T_0) + P_{\text{corr}}(\rho)$ satisfasse à :

$$\begin{cases} P_{\text{tot}}(\rho_0) = P_0, \\ \rho \frac{\partial P_{\text{tot}}}{\partial \rho} \Big|_{\rho_0, T_0} = K_0. \end{cases} \quad (2.62)$$

Les conditions normales de température et de pression (CNTP) sont définis pour $T_0 = 300$ K et $P_0 = 1$ bar. Par ailleurs, K_0 a été mesuré expérimentalement. Plus de détail sur la caractérisation des matériaux considérés seront donnés dans le chapitre 4.

La figure (2.3) présente l'isotherme à température ambiante de l'ablateur CHO, calculée par le modèle de Thomas-Fermi (courbe bleue) et avec la correction de Barnes (courbe rouge). Les valeurs des constantes E_0 et b sont : $E_0 = 0,4346$ kJ/g et $b = 4,0965$.

Conclusions :

Le calcul de la contribution électronique fait intervenir le numéro atomique Z et la masse molaire atomique A de chaque élément chimique composant le mélange. On utilise le modèle de Thomas-Fermi, que l'on applique à une sphère neutre. La dimension de la sphère est directement fixée par la densité ρ et par A . Des lois permettent un calcul simple des grandeurs thermodynamiques de chacun des éléments chimiques. Une loi de mélange isopression-isodensité est ensuite appliquée aux éléments chimiques individuels afin obtenir la pression totale et l'énergie interne du mélange. Finalement, une correction semi-empirique de Barnes est utilisée à température ambiante (T_0) pour corriger les valeurs calculées à basse densité et basse température.

2.5 Modifications de l'équation d'état

Comme R. More l'a expliqué dans son article [45], le modèle QEOS constitue un cadre général pour construire une équation d'état tabulée, et a vocation à être modifié. En particulier, les paramètres utilisés pour le calcul de la contribution ionique sont ajustables. Plus généralement, des modifications peuvent s'appliquer à la façon de calculer l'isotherme à température ambiante, ainsi qu'à la composante électronique, et à la composante ionique.

Ajout de l'isotherme à 300 K dans la décomposition des contributions : L'isotherme à température ambiante peut être déterminée séparément, puis introduite dans la décomposition des contributions. On sépare alors les contributions chaudes, dites thermiques, d'une contribution froide, représentée par l'isotherme à T_0 . Cette séparation s'écrit, dans le cas de l'énergie libre, suivant :

$$F(\rho, T) = F_{\text{ion}}^{\text{th}}(\rho, T) + F_{\text{éle}}^{\text{th}}(\rho, T) + F_{\text{c.f.}}(\rho), \quad (2.63)$$

Les contributions $F_{\text{ion/éle}}^{\text{th}}(\rho, T) = F_{\text{ion/éle}}(\rho, T) - F_{\text{ion/éle}}(\rho, T_0)$ désignent alors les contributions thermiques ioniques et électroniques de l'énergie libre. On fait ainsi apparaître un terme d'énergie libre à la température ambiante $F_{\text{c.f.}}(\rho)$. Ce terme est défini dans le modèle QEOS, comme :

$$F_{\text{c.f.}}(\rho) = F_{\text{ion}}(\rho, T_0) + F_{\text{éle}}(\rho, T_0) + E_{\text{corr}}(\rho), \quad (2.64)$$

avec, $E_{\text{corr}}(\rho)$ est la correction semi-empirique de Barnes.

L'avantage d'introduire l'isotherme $F_{\text{c.f.}}(\rho)$ dans la décomposition des contributions est qu'elle peut être calculée séparément, à l'aide d'une modélisation théorique adaptée à la matière froide, ou mesurée, par exemple, dans des cellules à enclume diamant.

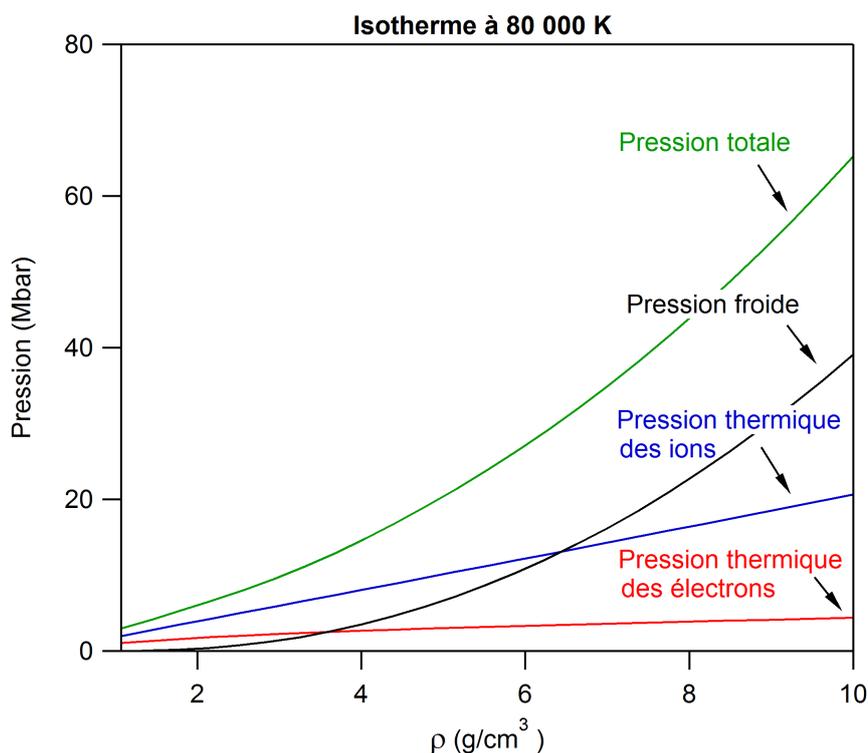


FIGURE 2.4 : Isotherme à 80000 K de l'ablateur CHO dans le modèle QEOS, avec l'introduction explicite de la contribution froide. La pression thermique ionique (en bleu) et la pression froide (en noir) représentent la majeure partie de la pression totale (en vert).

Modifications apportées à la contribution électronique : Nous pouvons ensuite changer la façon de calculer la contribution électronique. Parmi les modèles qui peuvent être utilisés, le modèle de Thomas-Fermi-Dirac inclut un terme d'échange et corrélation dans le modèle semi-classique de Thomas-Fermi. Le modèle Inferno [54, 55] introduit un traitement quantique des états électroniques, dans le cadre de la théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT⁸) appliquée à une sphère ionique. La théorie de la DFT sera expliquée dans le chapitre 3. Ce modèle, bien que permettant un calcul plus précis des effets électroniques dans un atome, nécessitent des calculs plus longs et plus complexes que ceux effectués dans le modèle de Thomas-Fermi. En particulier, les lois d'échelle ne s'appliquent pas. De plus, dans le cadre de la séparation (2.63), la contribution thermique des électrons participe moins à la pression totale que la contribution thermique des ions, pour des températures inférieures à 100000 K. La figure (2.4) illustre cette caractéristique sur l'isotherme à 80000 K. Nous avons ajouté l'isotherme à 300 K dans la décomposition des contributions ionique et électronique dans le modèle QEOS (2.63). L'isotherme à 300 K et la pression thermique des ions représentent alors la majeure partie de la pression totale. En effet, la pression thermique électronique intervient pour moins de 2 Mbar sur la pression totale qui s'étend

8. DFT est un acronyme de : Density Functional Theory.

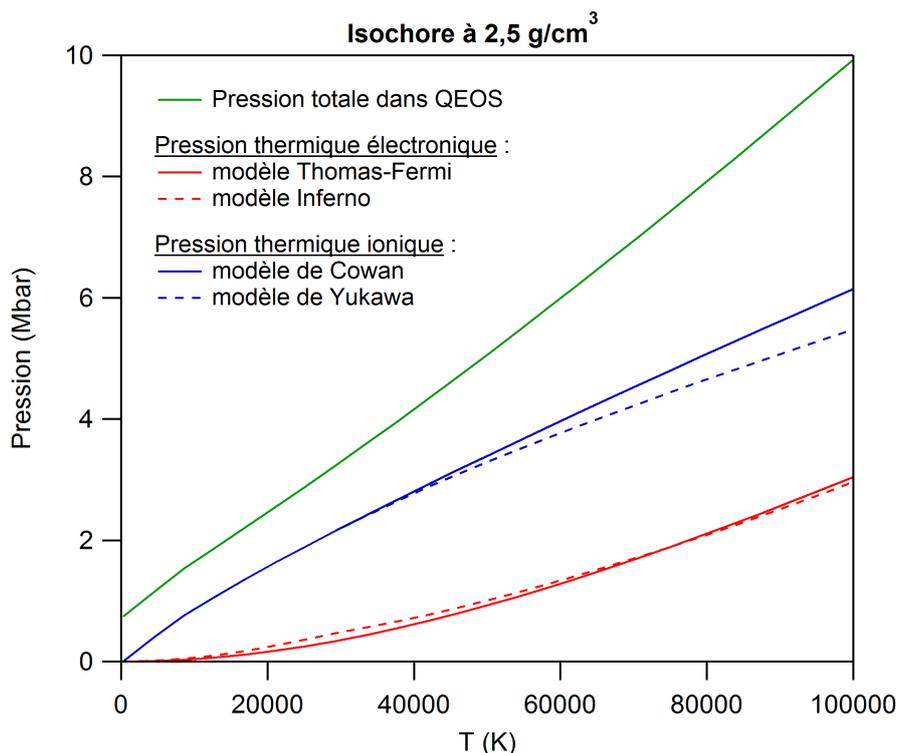


FIGURE 2.5 : Isochore à 2,5 g/cm³ de l'ablateur CHO dans le modèle QEOS. Les courbes en trait plein correspondent au modèle QEOS. Les courbes en pointillé correspondent à des modèles introduits dans l'équation d'état QEOS.

jusqu'à 65 Mbar. La figure (2.5) présente ces mêmes pressions sur l'isochore à 2,5 g/cm³. La pression thermique des électrons calculée avec le modèle quantique Inferno a été ajoutée. Dans le régime de température affiché sur cette figure, entre 0 et 100 000 K, aucune différence notable n'est observée entre le traitement semi-classique et le traitement quantique des électrons. Nous utiliserons donc le modèle Thomas-Fermi, sans modification.

Modifications apportées à la contribution ionique : Des modifications peuvent enfin être apportées au calcul de la contribution ionique.

En effet, dans la phase solide, D. Young et E. Corey [56] ont proposé de modifier l'isotherme à température ambiante, ainsi que le coefficient de Grüneisen pour restituer des phénomènes physiques mesurables, tels que les transitions de phase. Ils ont ensuite proposé d'introduire un modèle diatomique pour prendre en compte les effets de dissociation chimique sur l'équation d'état. Ce modèle contient des coefficients qui doivent être ajustés de façon arbitraire, ou à partir de données expérimentales.

Dans la phase fluide, le modèle de plasma de Yukawa [57] peut être utilisé à la place du modèle de Cowan, pour prendre en compte l'écrantage du potentiel interatomique dû aux électrons libres. L'utilisa-

tion de ce modèle permet alors de restituer la limite gaz parfait à haute température et de mieux décrire les effets de couches atomiques pour les très hautes pressions (> 100 Mbar). Pour traiter le domaine qui nous intéresse en premier lieu ($P =$ quelques Mbar, $\rho =$ quelques g/cm^3 , $T =$ quelques eV), nous utiliserons le modèle analytique de Cowan implémenté dans les tables QEOS. Ce modèle ne dépend que du coefficient de Grüneisen à partir duquel tous les paramètres du modèle peuvent être déterminés.

Perspectives :

Les modifications que nous apporterons au modèle QEOS concernent :

1. l'introduction d'une isotherme à température ambiante dans la séparation des contributions ioniques et électroniques. Cette isotherme sera calculée par une méthode de dynamique moléculaire quantique.
2. Le coefficient de Grüneisen sera modifié pour faire correspondre les tables QEOS à des prédictions numériques et des mesures expérimentales.
3. Aucun changement ne sera apporté à la contribution électronique.

Simulations de dynamique moléculaire quantique

Sommaire

3.1	Introduction	38
3.2	La dynamique moléculaire	39
3.2.1	Généralités	39
3.2.2	Mise en oeuvre de la dynamique moléculaire	40
3.2.3	Calcul des propriétés physiques des systèmes simulés	42
3.3	La théorie de la fonctionnelle de la densité	45
3.3.1	Formulation exacte de la théorie de la fonctionnelle de la densité	46
3.3.2	Détermination de la fonctionnelle universelle de la densité	47
3.3.3	Approximations introduites pour la résolution des équations de Kohn-Sham	53

3.1 Introduction

Dans le chapitre précédent, nous avons présenté le modèle QEOS qui a été choisi pour construire les équations d'état tabulées des ablateurs. Ce modèle se base sur une représentation simplifiée des plasmas, dans lequel on considère un atome isolé dans une cellule à symétrie sphérique. Certaines caractéristiques de la matière, comme les liaisons chimiques, ne sont alors pas décrites par cette modélisation. Nous cherchons à tester ce modèle dans un régime restreint du diagramme de phase qui est accessible sur les installations laser LULI2000 et GEKKO XII. En particulier, nous nous concentrerons sur des pressions et des températures de l'ordre de quelques mégabars et quelques électronvolts.

Le calcul des propriétés d'un système à l'équilibre thermodynamique dans ce régime est assez complexe. En effet, les actions conjointes de la pression et de la température permettent la coexistence de différentes espèces chimiques ou ioniques, comme les molécules, les atomes, ainsi que les ions et les électrons. Pour cette raison, nous avons utilisé une méthode de simulation de la matière qui ne nécessite pas de connaître à l'avance la composition du système pour des conditions de densité et de température données. Cette méthode est connue sous le nom de « dynamique moléculaire quantique » (QMD), ou de « dynamique moléculaire *ab initio* », puisque aucune hypothèse n'est faite à l'avance sur l'état du système. Le terme « dynamique moléculaire » signifie que l'évolution des atomes au cours du temps est calculée en résolvant les équations du mouvement de la mécanique classique. Le terme « quantique » indique que les forces qui s'exercent sur les atomes ne sont pas calculées à partir d'un terme donné *a priori*, mais sont déduites de la structure électronique.

Il existe plusieurs formulations de la dynamique moléculaire quantique. En particulier, la formulation de Car et Parrinello [58] traite en même temps le mouvements des ions et des électrons. Une autre formulation, couramment utilisée à l'heure actuelle, considère l'hypothèse de Born-Oppenheimer qui postule que les électrons atteignent instantanément l'équilibre thermodynamique au cours du déplacement des noyaux. On résout ainsi de façon statique le système électronique, à chaque pas de temps. Le problème de la structure électronique revient donc à résoudre un problème quantique indépendant du temps. Cette méthode a été choisie pour nos calculs.

Depuis les années 1990 et le développement des super-calculateurs, la dynamique moléculaire quantique est très utilisée pour décrire la matière dense et tiède. Elle a permis d'obtenir des informations aussi bien sur les équations d'état et le diagramme de phase des matériaux, que sur les propriétés de transport et les propriétés optiques. Par exemple, L. Collins [59] s'est intéressé en 1995 aux propriétés thermodynamiques et électroniques de l'hydrogène comprimé pour des températures comprises entre 3 000 et 60 000 K. Depuis, de nombreuses autres études numériques ont été réalisées sur des matériaux d'intérêts

astrophysiques comme le LiF [60], le quartz [61], l'aluminium [62, 63, 64] et le fer [65, 66, 67, 68]. Dans le cas des matériaux ablateurs, cette méthode de simulation a fourni des données d'équations d'état sur les mélanges CH [69, 70], CH_{1,36} [71], CH_{1,50} [32, 72], CH₂ [73, 74], dans un régime étendu du diagramme de phase. Nous nous proposons d'appliquer la méthode de la dynamique moléculaire quantique à des mélanges plus représentatifs des ablateurs des capsules du Laser Mégajoule.

Nous développons brièvement les principaux concepts de la dynamique moléculaire quantique. En premier lieu, nous détaillerons les approximations introduites dans le calcul de la dynamique moléculaire classique (section 3.2). Ensuite, nous présenterons la méthode utilisée pour le calcul de la structure électronique, ainsi que les principales approximations introduites pour la résolution numérique (section 3.3).

3.2 La dynamique moléculaire

3.2.1 Généralités

La dynamique moléculaire est une technique de simulation, qui constitue un outil de compréhension de la matière fondé uniquement sur la mise en oeuvre des forces interatomiques. Elle permet de suivre l'évolution temporelle d'un ensemble de particules en interaction. Pour un système de N particules, les positions et les vitesses de toutes les particules sont obtenues, à chaque instant, en intégrant des équations du mouvement issues des lois de la mécanique classique. Ces équations s'écrivent, pour une particule i de masse m_i , suivant :

$$m_i \frac{d^2 \mathbf{r}_i(t)}{dt^2} = \mathbf{f}_i(t), \quad (3.1)$$

$$\mathbf{f}_i(t) = - \frac{\partial V(\mathbf{R})}{\partial \mathbf{r}_i}. \quad (3.2)$$

La force exercée sur la particule i par les $(N-1)$ autres particules est notée $\mathbf{f}_i(t)$. Cette force est déterminée à partir du potentiel d'interaction $V(\mathbf{R})$, où \mathbf{R} correspond à l'ensemble des positions du système, tel que $\mathbf{R} = \{\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \dots, \mathbf{r}_N\}$. D'après la loi de conservation de l'énergie du système, on exprime l'énergie totale, comme $E = E_{\text{cin.}} + V$, avec $E_{\text{cin.}}$ l'énergie cinétique moyenne des particules.

À partir de la connaissance de la position et de la vitesse des particules à chaque instant, on peut suivre l'évolution de grandeurs physiques $A(t)$ au cours du temps. Les propriétés thermodynamiques sont obtenues de la moyenne temporelle de ces grandeurs sur une portion $[t_0, t]$ de la trajectoire de phase

à l'équilibre thermodynamique ¹.

$$\langle A \rangle = \lim_{t \rightarrow \infty} \frac{1}{t} \int_{t_0}^{t_0+t} A(\tau) d\tau. \quad (3.3)$$

L'hypothèse d'ergodicité assure que cette moyenne temporelle est équivalente à la moyenne d'ensemble. Ainsi, la dynamique moléculaire donne accès, à la fois aux propriétés dynamiques du système, puisque les positions et les vitesses sont connues à chaque instant, mais aussi aux propriétés statiques, comme la structure et la thermodynamique. Dans notre étude des ablateurs, nous allons nous intéresser aux propriétés statiques. Celles-ci pourront être directement comparées aux valeurs calculées par le modèle QEOS.

3.2.2 Mise en oeuvre de la dynamique moléculaire

3.2.2.1 Algorithme d'intégration temporelle

Le calcul des positions et les vitesses se fait par l'intégration numérique de l'équation (3.1). Cette intégration repose sur des méthodes de différences finies ² [75], qui discrétisent le temps sur un pas Δt . Les positions \mathbf{r}_i de chacune des particules du système à l'instant $t + \Delta t$ sont alors définies au moyen d'un développement de Taylor, à partir des positions et de leurs dérivées successives à un instant antérieur :

$$\mathbf{r}_i(t + \Delta t) = \mathbf{r}_i(t) + \frac{d\mathbf{r}_i(t)}{dt} \Delta t + \frac{1}{2!} \frac{d^2\mathbf{r}_i(t)}{dt^2} \Delta t^2 + \frac{1}{3!} \frac{d^3\mathbf{r}_i(t)}{dt^3} \Delta t^3 + \dots + \frac{1}{n!} \frac{d^n\mathbf{r}_i(t)}{dt^n} \Delta t^n \quad (3.4)$$

Les termes d'ordres élevés sont, en général, négligeables ce qui permet de tronquer le développement de Taylor. La façon de tronquer et de recombinaison des termes du développement donne lieu à des méthodes spécifiques, ayant chacune ses avantages et ses inconvénients. On utilise l'algorithme de L. Verlet [76, 77] qui est historiquement l'un des premiers introduits. Cet algorithme procède de la façon suivante :

- les positions des atomes à l'instant $t + \Delta t$ sont calculées à partir des positions et des vitesses à l'instant t , par la relation :

$$\mathbf{r}_i(t + \Delta t) = \mathbf{r}_i(t) + \Delta t \mathbf{v}_i(t) + \frac{\Delta t^2}{2m_i} \mathbf{f}_i(t), \quad (3.5)$$

- les forces $\mathbf{f}_i(t + \Delta t)$ sont calculées à partir des positions $\mathbf{r}_i(t + \Delta t)$, puis sont stockées pour le pas suivant.

1. On définit l'équilibre thermodynamique comme l'état que tout système isolé atteint après un temps suffisamment long, et qui est caractérisé par un certain nombre de grandeurs macroscopiques.

2. La méthode des différences finies est une technique de résolution numérique qui permet de rechercher les solutions approchées d'équations aux dérivées partielles. Elle consiste à résoudre un système de relations (schéma numérique) liant les valeurs des fonctions inconnues en certains points suffisamment proches les uns des autres.

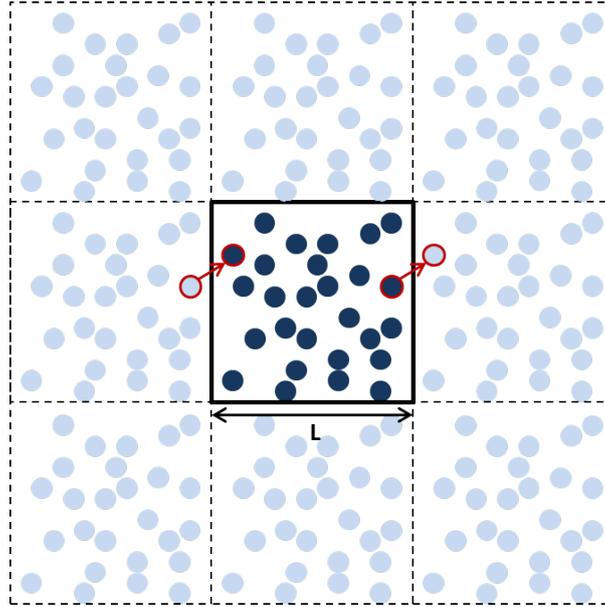


FIGURE 3.1 : Schéma en deux dimensions représentant la boîte de simulation de largeur L (au centre), ainsi que ses 8 images dans le cas où des conditions aux limites périodiques sont appliquées. Le cercle rouge représente un atome sortant de la boîte de simulation par l'une de ses faces. Les conditions aux limites périodiques permettent alors de conserver le nombre d'atomes, en le faisant rentrer par la face opposée.

- les vitesses sont ensuite mises à jour suivant :

$$\mathbf{v}_i(t + \Delta t) = \mathbf{v}_i(t) + \frac{\Delta t}{2m_i} [\mathbf{f}_i(t) + \mathbf{f}_i(t + \Delta t)] \quad (3.6)$$

La précision des calculs de dynamique moléculaire dépend de la façon de déterminer les forces interatomiques $\mathbf{f}_i(t)$. Dans le cas des simulations que nous avons effectuées, ces forces sont obtenues à partir d'un calcul quantique de la structure électronique, à chaque pas de temps. Cela permet d'avoir une grande précision dans les calculs de dynamique moléculaire. La méthode et les approximations utilisées pour le calcul de la structure électronique seront détaillées dans la section (3.3).

3.2.2.2 Conditions aux limites périodiques

Les simulations de dynamique moléculaire sont réalisées sur une région finie de l'espace, appelée boîte de simulation. On utilise une boîte cubique de volume $V = L^3$, de largeur L identique dans les trois directions de l'espace.

Le calcul des grandeurs macroscopiques nécessite de simuler un système de taille très importante, avec un nombre de particules N gigantesque, de l'ordre de grandeur du nombre d'Avogadro \mathcal{N}_A . Les moyens informatiques actuels limitent cependant le nombre de particules qui peut être pris en

compte. Dans le cas de la dynamique moléculaire quantique, ce nombre n'excède pas quelques centaines d'atomes sur les plus puissants calculateurs actuels. La boîte de simulation a alors une dimension de l'ordre du dixième de nanomètre, très éloignée des dimensions requises.

Pour recréer les effets d'un système réel, on applique des conditions aux limites périodiques. La boîte de simulation est alors dupliquée dans toutes les directions de l'espace (figure 3.1). Aux mouvements des particules dans la boîte primitive, on fait correspondre des mouvements identiques fictifs dans toutes les images périodiques. Lorsqu'une particule sort de la boîte primitive par l'une de ces faces, l'image de cette particule entre dans la boîte de face opposée. Cette méthode permet de garder le nombre de particules constant, tout en conservant la masse, l'énergie et le moment cinétique au cours de la simulation.

3.2.3 Calcul des propriétés physiques des systèmes simulés

La dynamique moléculaire permet d'obtenir les positions et les vitesses des atomes au cours du temps. Nous allons maintenant présenter les principales propriétés physiques qui peuvent être déduites de ces données.

3.2.3.1 Propriétés thermodynamiques

On considère que l'équilibre thermodynamique est atteint pour des systèmes dont les grandeurs macroscopiques, comme la pression et l'énergie interne, ne varient que très lentement par rapport à l'échelle de temps. On accède aux propriétés thermodynamiques du système, à partir de la moyenne arithmétique (équation 3.7) de ces grandeurs instantanées $A(t)$ sur un échantillonnage correspondant à des configurations d'équilibre³.

$$\langle A \rangle = \frac{1}{M} \sum_{l=1}^M A(l\Delta t) \quad (3.7)$$

où, M correspond à un nombre de configurations pour lesquelles les grandeurs macroscopiques $A(t)$ sont stables sur l'intervalle de temps.

Parmi les grandeurs macroscopiques accessibles :

- L'énergie potentielle est calculée à chaque instant à partir du potentiel coulombien d'interaction. Dans le formalisme de Born-Oppenheimer, ce potentiel a une composante nucléaire et électronique $F_{\text{éle}}(\mathbf{R})$, et s'exprime comme :

$$V(\mathbf{R}) = \sum_{i=1}^N \sum_{i < j} \frac{Z_i Z_j e^2}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|} + F_{\text{éle}}(\mathbf{R}) \quad (3.8)$$

3. Une configuration correspond à l'ensemble des positions et des vitesses atomiques à un instant donné.

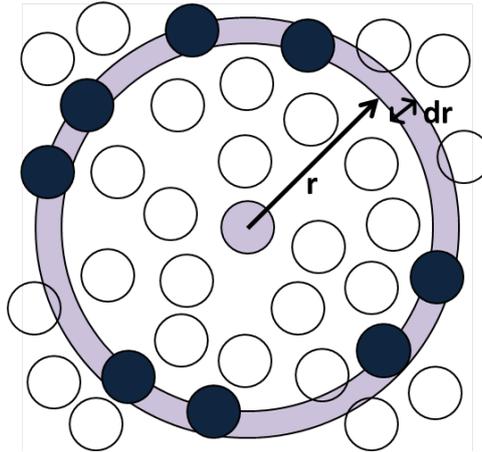


FIGURE 3.2 : Schéma représentant la discrétisation de l'espace dans le calcul de la fonction de distribution radiale. Les cercles représentent les atomes disposés de façon homogène dans la boîte de simulation.

Dans nos simulations, la contribution électronique est donnée par une minimisation de la densité électronique, à chaque pas de temps, dans le cadre de la théorie de la fonctionnelle de la densité.

- L'énergie cinétique est déterminée à partir de la configuration des vitesses $\mathbf{V} = (\mathbf{v}_1, \dots, \mathbf{v}_N)$ à l'instant t , suivant :

$$K(\mathbf{V}) = \frac{1}{2} \sum_{i=1}^N m_i \mathbf{v}_i^2 \quad (3.9)$$

- L'énergie totale du système est obtenue en ajoutant l'énergie cinétique à l'énergie potentielle.

$$E_{\text{tot}}(\mathbf{R}, \mathbf{V}) = K(\mathbf{V}) + V(\mathbf{R}) \quad (3.10)$$

- La pression est calculée à partir du tenseur des contraintes.

3.2.3.2 Propriétés structurales

Des informations sur la structure microscopique des systèmes simulés sont obtenues à partir de l'analyse des fonctions de distribution radiale (RDF⁴), notées $g(r)$. Ces fonctions représentent la probabilité de trouver une particule dans une coquille sphérique d'épaisseur dr à la distance r d'une autre particule, comme illustrée sur la figure (3.2). Ainsi, en discrétisant l'espace en de petits intervalles dr , on calcule, pour un atome donné, le nombre $dn(r)$ d'atomes situés à une distance comprise entre r et $r + dr$, par la relation :

$$dn(r) = \frac{N}{V} g(r) 4\pi r^2 dr, \quad (3.11)$$

avec N le nombre d'atomes dans la boîte de simulation, et V le volume.

4. Radial Distribution Function

En distinguant les espèces chimiques α et β , on définit les fonctions de distribution radiales partielles $g_{\alpha\beta}(r)$ par :

$$g_{\alpha\beta}(r) = \frac{V}{N_{\alpha}} \frac{dn_{\alpha\beta}(r)}{4\pi r^2 dr}. \quad (3.12)$$

Ces fonctions de distribution représentent la densité de probabilité qu'un atome d'une espèce α ait un voisin d'une espèce β à une distance r donnée. Dans la pratique, on moyenne les fonctions de distributions sur l'ensemble des M configurations à l'équilibre thermodynamique.

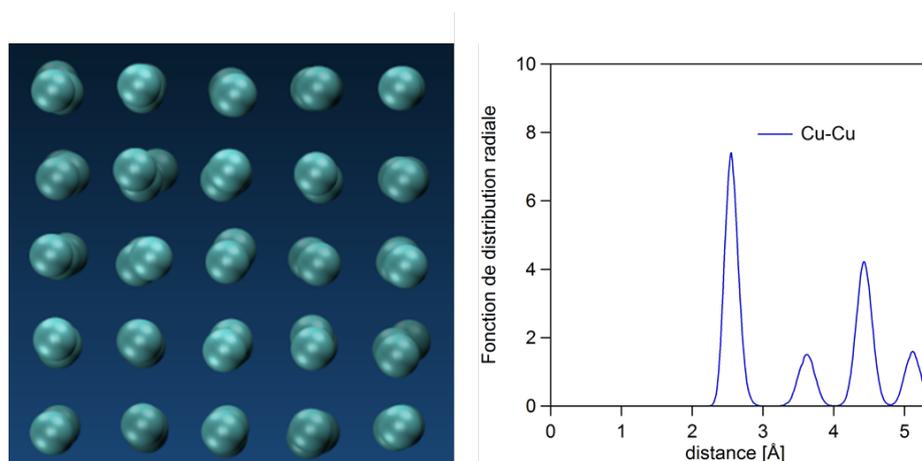


FIGURE 3.3 : L'image de gauche représente une boîte de simulation composée d'atome de cuivre (Cu) à température ambiante et à la densité standard. La figure de droite est la fonction de distribution radiale entre les atomes de cuivre-cuivre. La structure est cristalline, avec un arrangement des atomes de cuivre périodique, on observe donc une série de pics sur la fonction de distribution radiale.

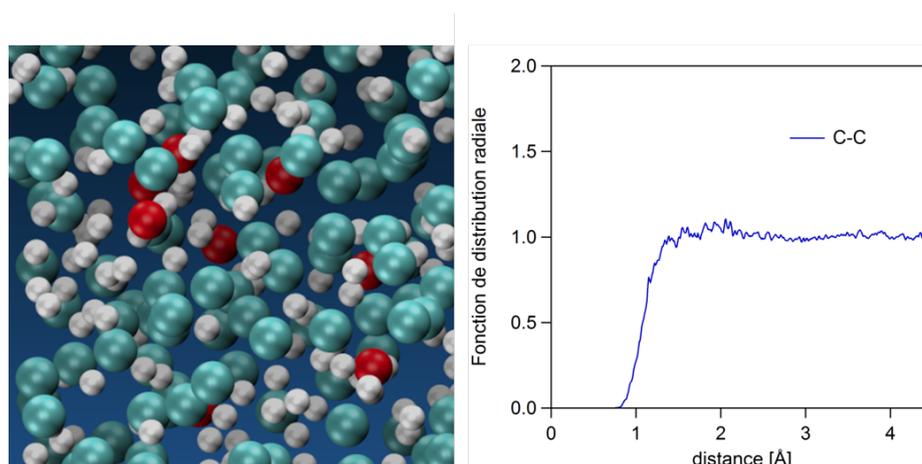


FIGURE 3.4 : L'image de gauche représente une boîte de simulation de l'ablateur CHO pour une condition de densité et de température imposée au système de $3,4 \text{ g/cm}^3$ et de 59210 K. La figure de droite est la fonction de distribution radiale entre les atomes de carbone. Aucun pic n'est visible, les molécules sont donc entièrement dissociées.

Pour un système parfaitement organisé et régulier, comme c'est le cas dans un cristal, la fonction de distribution partielle entre deux atomes présente une série de pics correspondant aux distances entre les premiers, deuxièmes, et troisièmes voisins. La figure (3.3) est un exemple de ce type de structure dans le cas du cuivre. Pour les liquides, un premier pic est visible, caractérisant un ordre à courte distance, suivi d'une atténuation des pics plus ou moins forte autour de la valeur unité. Lorsqu'il n'y a plus d'ordre local, aucun pic n'est visible. Les molécules sont entièrement dissociées. La figure (3.4) est un exemple d'une fonction de distribution radiale pour un milieu complètement dissocié.

3.3 La théorie de la fonctionnelle de la densité

Nous avons présenté les concepts des simulations de dynamique moléculaire que nous allons mettre en oeuvre pour tester les équations d'état tabulées. Cependant, la précision de la dynamique moléculaire repose sur la façon de déterminer les interactions entre les atomes du système. Dans le cadre de l'approximation de Born-Oppenheimer, ces interactions sont obtenues à partir de la fonction d'onde à N_e électrons, solution de l'équation de Schrödinger indépendante du temps. Les ions interviennent dans le calcul des états électroniques *via* l'introduction, dans cette équation, d'un potentiel externe.

Pour un système de N_e électrons en interaction dans un potentiel externe, l'équation à résoudre s'écrit sous forme adimensionnée, suivant :

$$\left(\sum_{l=1}^{N_e} \frac{\Delta_l}{2} + \frac{1}{2} \sum_{l \neq m}^{N_e} \frac{1}{|\mathbf{r}_l - \mathbf{r}_m|} + \sum_{l=1}^{N_e} V_{\text{ext}}(\mathbf{r}_l) \right) \phi(\mathbf{r}_1, \dots, \mathbf{r}_{N_e}) = E \phi(\mathbf{r}_1, \dots, \mathbf{r}_{N_e}), \quad (3.13)$$

où Δ_l est l'opérateur laplacien par rapport aux coordonnées de position de l'électron l , et $\phi(\mathbf{r}_1, \dots, \mathbf{r}_{N_e})$ est la fonction d'onde polyélectronique totale. Le terme entre parenthèses fait référence à l'hamiltonien du système. Il se compose d'un opérateur d'énergie cinétique, ainsi que d'un opérateur associé à l'énergie d'interaction entre les électrons, et du potentiel externe, dans lequel évoluent les électrons. Les interactions entre électrons sont décrites comme étant la somme d'interactions coulombiennes par paires d'électrons.

Dans cette équation, les électrons sont couplés entre eux de manière directe, par l'intermédiaire du terme d'interaction entre électrons et de manière indirecte, par anti-symétrie de la fonction d'onde⁵. Il nous est alors impossible de résoudre de façon exacte le système d'électrons en interaction dans un potentiel externe.

La résolution de ce système, qui est connu sous le nom de problème quantique à N corps, a été un enjeu majeur pour l'étude de la matière au cours du XX^e siècle. Il a fait l'objet de nombreuses refor-

5. L'anti-symétrie de la fonction d'onde est une conséquence du principe d'exclusion de Pauli. Celui-ci stipule que deux électrons de même spin ne peuvent pas occuper la même position.

mulations et approximations [78]. Parmi les plus connues, la théorie de Hartree-Fock et les méthodes post Hartree-Fock qui sont dérivées de ce formalisme permettent une résolution approchée de l'équation (3.13). La fonction d'onde polyélectronique totale du système est alors décrite sous la forme d'un déterminant de Slater, qui fait intervenir les fonctions d'ondes monoélectroniques. On résout ainsi un ensemble d'équations de Schrödinger monoélectroniques pour chacun des N_e électrons évoluant dans un champ moyen créé par les autres électrons. Ces méthodes, bien qu'étant performantes, demandent des temps de calculs extrêmement importants et ne peuvent être raisonnablement utilisées que pour des systèmes ne contenant qu'un nombre restreint d'atomes.

Pour remédier à ce problème, nous avons utilisé la méthode dite de la théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT). Cette méthode transforme le problème de la détermination des états électroniques en la minimisation d'une fonctionnelle de la densité. Elle se base sur les théorèmes de P. Hohenberg et W. Kohn (1964) qui légitiment l'utilisation de la densité électronique, comme variable de base d'un système d'électrons en interaction dans un potentiel externe.

3.3.1 Formulation exacte de la théorie de la fonctionnelle de la densité

Les théorèmes de P. Hohenberg et W. Kohn [79] forment la théorie de la fonctionnelle de la densité en une théorie exacte des systèmes à N corps. Elle s'applique à tout système de particules en interaction dans un potentiel externe. L'équation (3.13), qui définit le système électronique, est caractérisée par le nombre d'électrons du système, et le potentiel externe auquel les électrons sont soumis. De façon générale, la connaissance de ces deux grandeurs permet de déterminer la fonction d'onde de l'état fondamental, ainsi que la densité électronique associée. En remarquant cela, P. Hohenberg et W. Kohn ont énoncé deux théorèmes qui permettent de reformuler le problème de résolution du système électronique.

Théorème 1 : Pour tout système de particules en interaction dans un potentiel externe $V_{\text{ext}}(\mathbf{r})$, ce potentiel est déterminé de façon unique, à une constante additive près, par la densité $n_0(\mathbf{r})$ du système dans son état fondamental.

En d'autres termes, la densité électronique devient une variable de base du système au même titre que la fonction d'onde. Elle s'exprime suivant :

$$n(\mathbf{r}) = N_e \int d^3 r_2 \dots d^3 r_{N_e} |\phi(\mathbf{r}, \mathbf{r}_2, \dots, \mathbf{r}_{N_e})|^2. \quad (3.14)$$

Théorème 2 : Une fonctionnelle universelle de la densité, $F[n]$, peut être définie pour l'énergie pour n'importe quel potentiel externe $V_{\text{ext}}(\mathbf{r})$. Pour tout potentiel externe, l'énergie de l'état fondamental du

système est la valeur minimale de cette fonctionnelle. La densité $n(\mathbf{r})$ qui minimise cette fonctionnelle de l'énergie est exactement la densité $n_0(\mathbf{r})$ de l'état fondamental du système.

Le second théorème de P. Hohenberg et W. Kohn permet de définir l'énergie comme une fonctionnelle de la densité électronique $n(\mathbf{r})$, qui s'écrit suivant :

$$E[n, V_{\text{ext}}] = F[n] + \int d^3r V_{\text{ext}}(\mathbf{r})n(\mathbf{r}). \quad (3.15)$$

L'état fondamental du système à température nulle est alors obtenu en minimisant l'énergie totale par rapport à la densité électronique, c'est-à-dire :

$$E_0[n_0, V_{\text{ext}}(n_0)] = \min_{n \rightarrow n_0} E[n, V_{\text{ext}}], \quad (3.16)$$

avec n_0 la densité électronique de l'état fondamental.

La théorie de la fonctionnelle de la densité remplace ainsi le problème de la résolution de l'équation de Schrödinger polyélectronique à la détermination de la fonctionnelle $F[n]$. Cependant, la forme exacte de cette fonctionnelle n'est pas connue. Des hypothèses et approximations ont alors été proposées pour la calculer.

3.3.2 Détermination de la fonctionnelle universelle de la densité

Nous allons détailler deux formulations de la DFT qui permettent d'exprimer la fonctionnelle de la densité $F[n]$, moyennant certaines approximations.

3.3.2.1 Formulation statistique de Thomas-Fermi

En 1927, L. Thomas et E. Fermi [80] ont proposé une description de l'atome ne s'appuyant pas sur une fonction d'onde. Ils supposèrent que le nuage électronique est équivalent à un gaz uniforme d'électrons indépendants. Les interactions entre électrons sont alors négligées.

L'énergie cinétique $T_{\text{TF}}[n]$ est calculée en faisant l'approximation que chaque élément de volume contient une densité locale uniforme. On suppose alors que l'espace est un assemblage de cellules cubiques de côté a , indépendantes les unes des autres, et contenant N_e électrons considérés comme des fermions indépendants de spin 1/2 (à $T = 0$). La densité d'état s'exprime par :

$$g(\varepsilon) = \frac{\pi}{2} \left(\frac{8m_e a^2}{h^2} \right) \varepsilon^{\frac{1}{2}} \quad (3.17)$$

où ε est le niveau d'énergie considéré, h la constante de Planck et m_e la masse électronique. Les électrons étant considérés comme des fermions, on peut exprimer le taux d'occupation de chaque état par la fonction de distribution de Fermi-Dirac qui, à $T = 0$ est définie par :

$$f(\varepsilon) = \begin{cases} 1 & \text{si } \varepsilon \leq \varepsilon_F \\ 0 & \text{si } \varepsilon > \varepsilon_F \end{cases} \quad (3.18)$$

où ε_F est l'énergie de Fermi du gaz d'électrons.

L'énergie, et le nombre d'électrons N_e dans la cellule, sont calculés en utilisant les formules de physique statistique usuelles :

$$E = \int_0^{+\infty} \varepsilon f(\varepsilon) g(\varepsilon) d\varepsilon = \frac{8\pi}{5} \left(\frac{2m_e}{h^2} \right)^{\frac{3}{2}} a^2 \varepsilon_F^{5/2}, \quad (3.19)$$

$$N_e = \int_0^{+\infty} f(\varepsilon) g(\varepsilon) d\varepsilon = \frac{8\pi}{3} \left(\frac{2m_e}{h^2} \right)^{\frac{3}{2}} a^3 \varepsilon_F^{3/2}. \quad (3.20)$$

En insérant la relation (3.20) dans (3.19), on obtient une expression de l'énergie électronique en fonction du nombre d'électrons N_e et de la taille de la cellule a .

$$E = \frac{3\hbar^2}{10m_e} (3\pi^2)^{2/3} a^3 \left(\frac{N_e}{a^3} \right)^{\frac{5}{2}} \quad (3.21)$$

Lorsque l'on fait tendre $a \rightarrow 0$ (cellules infinitésimales), la quantité $\frac{N_e}{a^3}$ tend vers la densité électronique $n(\mathbf{r})$ au point \mathbf{r} . L'énergie cinétique totale des électrons dans tout l'espace s'exprime alors dans la formulation de Thomas-Fermi comme une fonctionnelle de la densité $n(\mathbf{r})$.

$$T_{\text{TF}}[n] = C_F \frac{\hbar^2}{m_e} \int n(\mathbf{r})^{5/3} d^3r, \quad (3.22)$$

avec $C_F = \frac{3}{10} (3\pi^2)^{2/3}$.

Le description de Thomas-Fermi apporte une nouvelle formulation de l'énergie cinétique qui devient une fonctionnelle de la densité. En ajoutant des interactions électrostatiques entre électrons, la fonctionnelle universelle de la densité de Hohenberg et Kohn s'exprime, suivant :

$$F[n] = T_{\text{TF}}[n] + \frac{1}{2} \int \int \frac{n(\mathbf{r})n(\mathbf{r}')}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} d^3r d^3r' \quad (3.23)$$

Cette formulation de la DFT associée à la dynamique moléculaire est connue sous le terme de dynamique moléculaire sans orbitale. Ces calculs ne restituent pas les liaisons chimiques mais permettent de décrire la matière à très haute température. Des simulations de ce type ont récemment été effectuées sur les mélanges C_2H_3 [72] et C_8H_8 [81], de composition proche des ablateurs des capsules du Laser Mégajoule. Des données d'équation d'état du C_2H_3 ont été obtenues par Danel et Kazandjian [72], pour des densités entre 1 et 10 g/cm^3 et des températures entre 60 000 et 100 000 K. Les propriétés statiques et l'ionisation moyenne du polystyrène (C_8H_8) ont été calculées par Hu *et al.* [81], pour des densités entre 0,5 et 100 g/cm^3 et des températures entre 15 600 et 500 000 K.

Nous avons choisi la formulation de Kohn-Sham de la DFT qui introduit la notion d'orbitales atomiques pour décrire le système électronique des atomes et permet de prendre en compte les liaisons chimiques. Elle est ainsi plus adaptée au régime thermodynamique qui nous intéresse.

3.3.2.2 Formulation de Kohn-Sham

En 1965, W. Kohn et L. Sham [82] introduirent la notion d'orbitale dans le formalisme de la théorie de la fonctionnelle de la densité. Dans ce cas, l'énergie cinétique dépend explicitement de la fonction d'onde polyélectronique et s'écrit suivant :

$$T[n] = \langle \phi | \sum_{l=1}^{N_e} -\frac{1}{2} \nabla_l^2 | \phi \rangle, \quad (3.24)$$

avec $|\phi\rangle$ la fonction d'onde totale du système polyélectronique dans son état fondamental.

Kohn et Sham adaptèrent ensuite le modèle d'Hartree-Fock à particules indépendantes au formalisme de la DFT, auquel ils ont introduit les effets de corrélation. Le système d'électrons en interaction dans un potentiel externe est remplacé par un système auxiliaire simple d'électrons indépendants évoluant dans un potentiel effectif ayant la même densité électronique $n_0(r)$ que le système à N_e corps dans son état fondamental. Cette idée est illustrée sur la figure (3.5).

On suppose qu'il existe une fonction d'onde polyélectronique décrite par un produit antisymétrisé de fonctions d'onde monoélectroniques $\varphi_l(r)$ qui reproduit la fonction d'onde exacte du système. L'énergie cinétique s'écrit comme :

$$T_s[n] = \sum_{l=1}^{N_e} \langle \varphi_l | -\frac{1}{2} \nabla_l^2 | \varphi_l \rangle. \quad (3.25)$$

La fonctionnelle universelle de l'énergie introduite par Hohenberg et Kohn s'exprime alors, à température nulle, sous la forme :

$$F[n] = T_s[n] + E_H[n] + E_{xc}[n], \quad (3.26)$$

où, $E_H[n]$ est un terme d'interaction coulombienne entre électrons, et $E_{xc}[n]$ un terme d'échange et de corrélation qui contient les effets quantiques non pris en compte dans les deux autres termes de l'équation (3.26). Cette fonctionnelle est calculée exactement à partir de la densité électronique $n(\mathbf{r})$, obtenue à température nulle, par :

$$n(\mathbf{r}) = \sum_{l=1}^{N_e} |\varphi_l(\mathbf{r})|^2. \quad (3.27)$$

Le fait d'introduire une représentation orbitalaire dans le formalisme de la DFT transforme la minimisation de l'énergie par rapport à une densité électronique en une minimisation de l'énergie par rapport à un jeu d'orbitales.

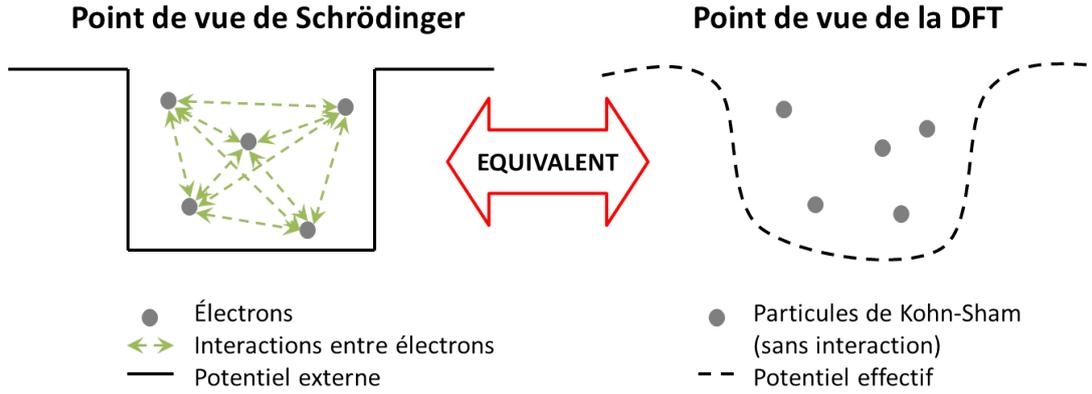


FIGURE 3.5 : Illustration du principe de la DFT développé par Kohn et Sham

De la même façon que l'on obtient les équations d'Hartree-Fock dans les méthodes de fonctions d'onde, on arrive à un ensemble d'équations de Schrödinger monoélectroniques similaires pour la DFT, connues sous le nom d'équations de Kohn-Sham. Celles-ci s'expriment, en unités atomiques, par :

$$\left(-\frac{1}{2}\nabla_l^2 + V_{\text{eff}}(\mathbf{r}) \right) \varphi_l(\mathbf{r}) = \varepsilon_l \varphi_l(\mathbf{r}), \quad (3.28)$$

avec $\varphi_l(\mathbf{r})$ les orbitales de Kohn-Sham minimisant la fonctionnelle de la densité, et ε_l les valeurs propres associées. Le terme entre parenthèses correspond à l'Hamiltonien de Kohn-Sham. Il comporte un opérateur d'énergie cinétique, et un potentiel effectif dans lequel les électrons se déplacent. Le potentiel effectif de Kohn-Sham s'écrit suivant :

$$V_{\text{eff}}[n(\mathbf{r})] = V_{\text{H}}[n(\mathbf{r})] + V_{\text{xc}}[n(\mathbf{r})] + V_{\text{ext}}(\mathbf{r}). \quad (3.29)$$

Il est composé d'un potentiel coulombien lié aux interactions entre électrons, appelé potentiel de Hartree et noté $V_{\text{H}}[n(\mathbf{r})]$, d'un potentiel d'échange et corrélation, noté $V_{\text{xc}}[n(\mathbf{r})]$, ainsi que d'un potentiel associé aux interactions entre les noyaux et les électrons, noté $V_{\text{ext}}(\mathbf{r})$.

Le potentiel d'Hartree s'écrit, comme,

$$V_{\text{H}}[n(\mathbf{r})] = \int \frac{n(\mathbf{r}')}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} d^3r'. \quad (3.30)$$

Le potentiel d'échange et corrélation est un terme purement quantique dû au principe d'exclusion de Pauli. En plus de contenir l'échange et la corrélation électronique qui représentent l'interaction simultanée entre les électrons, il contient des corrections à l'énergie cinétique. On le définit à partir de l'énergie d'échange et corrélation $E_{\text{xc}}[n]$, par :

$$V_{\text{xc}}[n(\mathbf{r})] = \frac{\delta E_{\text{xc}}}{\delta n}. \quad (3.31)$$

L'introduction de ce terme permet d'obtenir la solution exacte du problème à N corps dans le formalisme d'électrons indépendants. Cependant, la forme exacte de la fonctionnelle $E_{\text{xc}}[n]$ n'est pas connue et doit

faire l'objet d'approximations. Le choix d'une fonctionnelle pour l'échange et la corrélation constitue l'une des principales approximations de la théorie de la fonctionnelle de la densité.

Formulation à température finie : Nous avons explicité la formulation de Kohn-Sham de la DFT pour un système à température nulle. Les états électroniques sont alors, soit doublement occupés (en fonction du spin), soit vides. Cette formulation a été étendue à un système à température finie par Mermin [83]. La densité électronique s'exprime, dans ce cas, suivant :

$$n(\mathbf{r}) = \sum_l f_l |\varphi_l(\mathbf{r})|^2, \quad (3.32)$$

avec f_l l'occupation de l'état l donné par la distribution de Fermi-Dirac.

La fonctionnelle universelle de l'énergie s'écrit à température finie, par :

$$F[n] = F_0[n] + E_H[n] + E_{xc}[n], \quad (3.33)$$

où, $F_0[n]$ est un terme cinétique-entropique du système d'électrons indépendant, qui s'obtient de l'expression :

$$F_0[n] = K_0 - TS_0, \quad (3.34)$$

où, K_0 et S_0 sont respectivement l'énergie cinétique et l'entropie du gaz d'électrons indépendant. Ils s'expriment suivant :

$$K_0[n] = \sum_l f_l \langle \varphi_l | -\frac{1}{2} \nabla_l^2 | \varphi_l \rangle, \quad (3.35)$$

$$S_0 = -k_B \sum_l [f_l \log(f_l) + (1 - f_l) \log(1 - f_l)]. \quad (3.36)$$

L'énergie cinétique, à température finie, est formellement identique à l'expression (3.26). Cependant, la sommation s'effectue sur tous les états d'occupation partielle f_l jusqu'à l'infini. Dans la pratique, on introduit un certain nombre d'orbitales, peuplées jusqu'à un niveau de précision fixé [84].

Résolution numérique des équations de Kohn-Sham Pour résoudre numériquement les équations de Kohn-Sham, on utilise un schéma auto-cohérent. On effectue alors des itérations successives jusqu'à ce qu'un critère de convergence soit vérifié. Cette technique itérative est détaillée sur la figure (3.6).

La première étape consiste à déterminer le potentiel effectif de Kohn-Sham à partir d'une densité électronique *ad hoc*. L'utilisation de ce potentiel rend ainsi possible la résolution des équations de Kohn-Sham. À partir des fonctions d'onde solutions de ces équations, on calcule une nouvelle densité

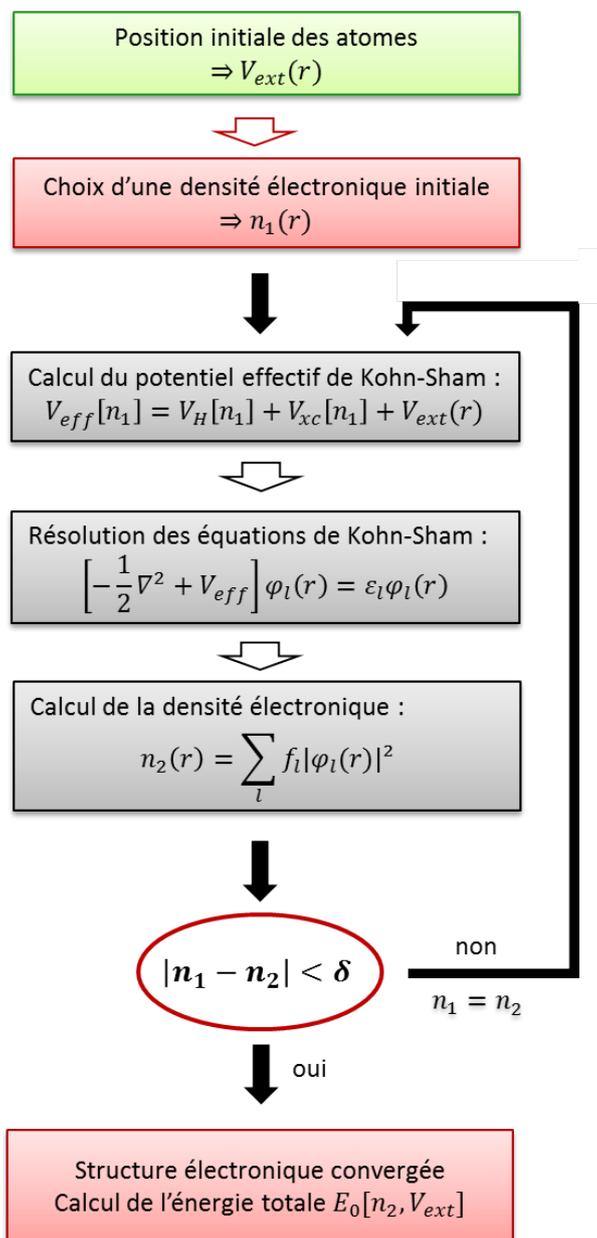


FIGURE 3.6 : Illustration du schéma de résolution auto-cohérent des équations de Kohn-Sham.

électronique. On réitère le calcul jusqu'à ce que la différence entre deux densités électroniques, calculées lors de deux itérations successives, soit inférieure à une valeur maximum définie par le critère de convergence choisi, noté δ sur la figure (3.6).

3.3.3 Approximations introduites pour la résolution des équations de Kohn-Sham

La résolution des équations de Kohn-Sham nécessite de représenter chacun de ces termes de façon à permettre un traitement numérique avec les moyens informatiques actuels. Différentes hypothèses et approximations ont été proposées dans ce sens. Nous allons détailler les principales approximations ayant été introduites dans nos simulations de dynamique moléculaire quantique. Elles concernent la détermination de la fonctionnelle d'échange et corrélation, ainsi que le traitement des interactions électron-ion, et le calcul des fonctions d'ondes électroniques.

3.3.3.1 Choix d'une fonctionnelle d'échange et corrélation

Le calcul des interactions entre électrons passe par la détermination de la fonctionnelle d'échange et corrélation $E_{xc}[n]$. Puisqu'il n'existe pas d'expression exacte de $E_{xc}[n]$, plusieurs fonctionnelles ont été développées et testées. Le choix d'une fonctionnelle se fait en fonction des propriétés étudiées, et est validée par une comparaison avec des résultats expérimentaux. Par exemple, Y. Laudernet a choisi la fonctionnelle qui restitue le volume d'équilibre à température nulle du quartz [61].

Il existe plusieurs familles de fonctionnelles d'échange et corrélation. Parmi les plus connues, les fonctionnelles LDA⁶, et les fonctionnelles GGA⁷ sont construites à partir d'une description locale ou quasi-locale de la densité.

Les fonctionnelles LDA : L'approximation de la densité locale (LDA) est la fonctionnelle la plus simple et la première historiquement à avoir été développée. Introduite par Kohn-Sham en 1965 [82], elle se base sur l'hypothèse que l'espace est discrétisé en petits volumes contenant un gaz homogène d'électrons non polarisés dont la densité locale $n(r)$ est connue (on ne prend pas en compte les états de spin). L'énergie d'échange et corrélation du système s'écrit alors sous la forme :

$$E_{xc}[n] = \int \varepsilon_{xc}(\mathbf{r})n(\mathbf{r})d^3r = \int [\varepsilon_x^{\text{hom}}(\mathbf{r}) + \varepsilon_c^{\text{hom}}(\mathbf{r})] n(\mathbf{r})d^3r, \quad (3.37)$$

où, $\varepsilon_{xc}(\mathbf{r})$ est l'énergie d'échange et corrélation d'un gaz homogène de densité $n(\mathbf{r})$, avec $\varepsilon_x^{\text{hom}}(\mathbf{r})$ et $\varepsilon_c^{\text{hom}}(\mathbf{r})$ les composantes de l'échange et de la corrélation électronique.

6. Local Density Approximation

7. Generalized Gradient Approximation

Le terme d'échange a été exprimé analytiquement par Dirac sous la forme :

$$E_x^{\text{LDA}}[n] = -\frac{1}{3} \left(\frac{3}{\pi} \right)^{1/3} \int n(\mathbf{r})^{4/3} d^3r. \quad (3.38)$$

Il n'existe pas de calcul exact pour le terme de corrélation $E_c^{\text{LDA}}[n]$. On utilise alors des approximations supplémentaires ou bien une interpolation de résultats numériques. La fonctionnelle de J. Perdew et Y. Wang [85], qui a été déterminée à partir de l'interpolation des énergies de corrélation obtenues par des calculs Monte Carlo quantiques [86], est très souvent utilisée.

Les approximations LDA donnent de bons résultats pour des matériaux dont la densité électronique est relativement uniforme. Cependant, elle ne prend pas en compte des régions où la densité présente des discontinuités. D'autres fonctionnelles, comme la fonctionnelle GGA, ont été développées pour prendre en compte les gradients de densité.

Les fonctionnelles GGA : L'approximation GGA considère la non-homogénéité de la densité électronique réelle en incluant un gradient de densité dans le calcul des termes d'échange et de corrélation. La fonctionnelle $E_{xc}^{\text{GGA}}[n]$ dépend explicitement de la densité électronique $n(\mathbf{r})$ et du gradient de densité $\nabla n(\mathbf{r})$:

$$E_{xc}^{\text{GGA}}[n] = \int f_{xc}[n(\mathbf{r}), |\nabla n(\mathbf{r})|] n(\mathbf{r}) d^3r. \quad (3.39)$$

3.3.3.2 Traitement des interactions électron-ion

Le traitement des interactions entre les électrons et le potentiel extérieur V_{ext} , c'est-à-dire l'interaction électron-ion, utilise des approximations pour limiter le nombre d'électrons à considérer dans les calculs de DFT. Ces approximations présupposent une séparation claire entre les électrons. On se représente alors un atome comme étant constitué de deux parties : d'une partie interne composée d'un ion positif regroupant le noyau et les électrons de coeur, et d'une partie externe composée du reste des électrons considérés comme des électrons de valence. Cette séparation s'explique par le fait que les électrons de valence participent beaucoup plus aux propriétés physiques et chimiques de la matière, que les électrons de coeur, fortement liés au noyau. En particulier, les électrons de coeurs ne sont pas impactés par les liaisons chimiques, ils sont comme dans un atome isolé.

Approximation des coeurs gelés : Suivant cette séparation, dans l'approximation des coeurs gelés, seuls les électrons de valence sont traités durant la résolution des équations de Kohn-Sham. Les électrons de coeur sont, quant à eux, gelés autour du noyau.

Cependant, bien que ne participant pas directement aux propriétés physiques et chimiques du système, les électrons de coeur ont pour effet d'écranter la charge du noyau, et provoquent de fortes oscillations sur les fonctions d'ondes des électrons de valence. Ces oscillations se retrouvent dans la région de coeur à cause du principe d'exclusion de Pauli. Plus les électrons sont dans des couches externes, plus leurs fonctions d'ondes oscilleront et seront difficiles à décrire numériquement dans cette région.

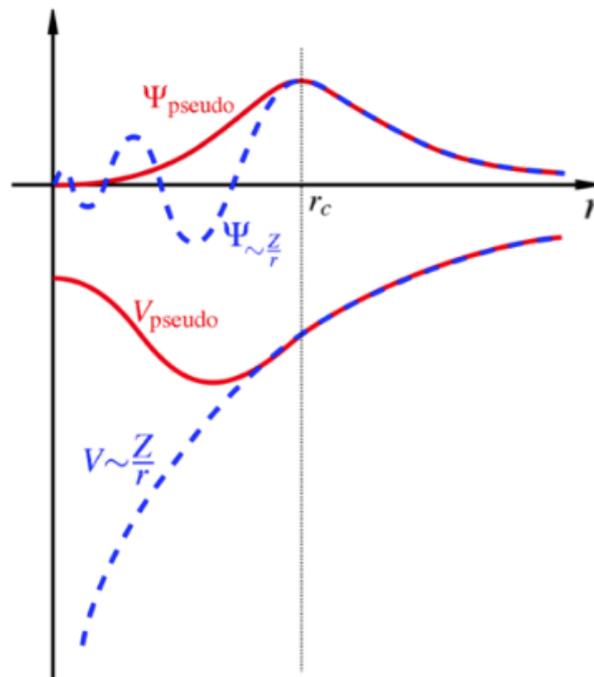


FIGURE 3.7 : Schéma illustrant le principe de l'approximation des pseudopotentiels : la pseudofonction d'onde (trait plein rouge) remplace la vraie fonction d'onde (trait pointillé bleu) près du noyau.

Approximation des pseudopotentiels : Dans le cas où les fonctions d'onde électroniques sont développées sur une base d'ondes planes, l'approximation des pseudopotentiels simplifie leur traitement dans la région de coeur. Le potentiel coulombien fort, créé par les noyaux et les électrons de coeur, est alors remplacé par un pseudopotentiel ionique plus doux [87]. Celui-ci est construit de façon à reproduire les propriétés de diffusion des vraies fonctions d'ondes de valence, tout en supprimant les effets des électrons de coeur en dessous d'un rayon de coupure r_c . Le pseudopotentiel agit alors sur un ensemble de pseudofonctions d'ondes, développées sur une base d'ondes planes en lieu et place des vraies

fonctions d'ondes, et ayant les mêmes états propres dans l'équation de Schrödinger. Au delà de la région de coeur, le pseudopotentiel se réduit au potentiel ionique, de façon à ce que la pseudofonction d'onde soit égale à la vraie fonction d'onde. Le principe de l'approximation des pseudo-potentiels est illustré sur la figure (3.7).

3.3.3.3 Représentation numérique des fonctions d'ondes dans le formalisme PAW

Dans nos simulations, nous avons calculé les fonctions d'ondes de Kohn-Sham dans le cadre du formalisme PAW⁸. Cette méthode permet de décrire les fonctions d'ondes exactes du système tous électrons, tout en fournissant un calcul rapide des équations de Kohn-Sham. Nous n'allons pas ici entrer dans les détails techniques de la méthode PAW étant donné que de nombreux articles traitent déjà de ce sujet [88, 89, 90, 91, 92]. Cependant, afin de mieux comprendre les approximations introduites dans le calcul de la DFT, nous allons détailler les principes de base sur lesquels se fondent cette méthode.

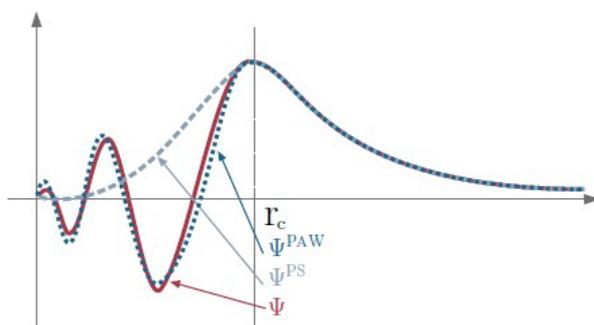


FIGURE 3.8 : Schéma illustrant le calcul d'une fonction d'onde d'un électron de valence dans le cadre de l'approximation des pseudo-potentiels et de la méthode PAW. La fonction d'onde Ψ réelle est indiquée en rouge. La pseudo-fonction d'onde Ψ^{PS} ne permet pas de décrire les oscillations dans la région de coeur (pour $r < r_c$), contrairement à la fonction d'onde Ψ^{PAW} calculée par la méthode PAW.

L'idée maîtresse de la méthode PAW est de considérer deux bases différentes pour décrire les fonctions d'ondes. Une base locale est utilisée dans la région de coeur, définie par une sphère de rayon r_{PAW} centrée sur le noyau. Une base d'ondes planes est utilisée pour décrire l'espace entre les sphères.

Une pseudofonction d'onde est alors calculée dans tout l'espace dans le cadre de l'approximation des pseudopotentiels. Cette fonction d'ondes est développée sur une base d'ondes planes à la fois en dehors et à l'intérieur des sphères PAW. Les oscillations des fonctions d'ondes dans la région de coeur, non décrites par le pseudopotentiel, sont calculées exactement à l'aide d'une base locale. Une transformation permet ensuite de reconstruire la fonction d'onde exacte du système. Notons que le rayon de

8. Projected Augmented Wave

coupure r_c du pseudopotentiel est, en général, choisi de façon à être égal au rayon des sphères PAW (r_{PAW}), c'est-à-dire $r_c = r_{\text{PAW}}$.

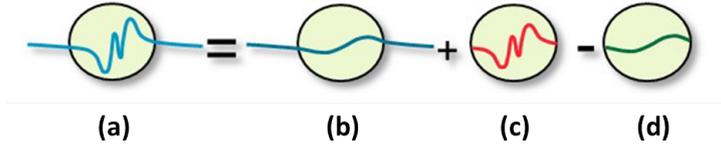


FIGURE 3.9 : Principe de la méthode PAW : la fonction d'onde exacte du système tous électrons (a) est obtenue en calculant une pseudofonction d'onde dans tout l'espace (b). Une transformation remplace ensuite la partie autour du noyau (d) par la fonction d'onde réelle (c) calculée à l'aide d'une base locale.

Le développement des fonctions d'ondes de Kohn-Sham sur une base d'ondes planes se justifie par l'utilisation des conditions aux limites périodiques *via* le théorème de Bloch.

Théorème de Bloch : Initialement développé pour les solides cristallins [93], ce théorème nous dit que dans un système périodique, chaque fonction d'onde électronique peut s'écrire sous la forme d'ondes planes que multiplie une fonction ayant la même périodicité que le système, $u_n(\mathbf{r})$:

$$\varphi_{\mathbf{k},n}(\mathbf{r}) = e^{i(\mathbf{k},\mathbf{r})} u_n(\mathbf{r}). \quad (3.40)$$

Le théorème de Bloch introduit deux nombres quantiques : le vecteur d'onde \mathbf{k} et l'indice de bande n . Le premier est un nombre quantique, caractéristique de la symétrie de translation du potentiel périodique, et sera restreint à la première zone de Brillouin. L'indice de bande n apparaît dans ce théorème du fait que, pour tout point \mathbf{k} , il existe plusieurs solutions de l'équation de Schrödinger.

La fonction périodique $u_n(\mathbf{r})$ peut être développée, par transformée de Fourier, sur une base d'ondes planes de vecteur d'onde \mathbf{G} appartenant à l'espace réciproque du potentiel périodique. Cette fonction s'écrit :

$$u_n(\mathbf{r}) = \sum_{\mathbf{G}} c_{n,\mathbf{G}} e^{i(\mathbf{G},\mathbf{r})}. \quad (3.41)$$

Chaque fonction d'onde monoélectronique peut ainsi s'écrire comme la somme d'ondes planes :

$$\varphi_{\mathbf{k},n}(\mathbf{r}) = \sum_{\mathbf{G}} c_{n,\mathbf{k}+\mathbf{G}} e^{i(\mathbf{k}+\mathbf{G})\mathbf{r}}. \quad (3.42)$$

Réduction de la base d'ondes planes : La somme de l'équation (3.42) s'étend sur tous les vecteurs \mathbf{G} du réseau réciproque. Dans un cas idéal, les fonctions d'ondes sont développées sur une base infinie pour un nombre infini de points \mathbf{k} . Afin de réduire la base d'onde plane et ainsi le nombre de calculs à

effectuer, on définit une énergie cinétique de coupure E_{cut} , suivant :

$$\frac{\hbar^2}{2m_e} |\mathbf{k} + \mathbf{G}| < E_{\text{cut}}. \quad (3.43)$$

Le choix d'une valeur de E_{cut} fixe le nombre de valeurs de \mathbf{G} pour chaque point \mathbf{k} pour lesquelles la relation (3.43) est vérifiée.

Une autre façon de réduire le temps de calcul est de discrétiser l'espace des points \mathbf{k} de façon à ce que les calculs s'effectuent sur une grille de points de l'espace réciproque judicieusement choisie. Il est cependant nécessaire de vérifier la convergence des grandeurs thermodynamiques par rapport au choix du nombre de points \mathbf{k} à traiter, et de la valeur de l'énergie de coupure.

Conclusions :

Les principales méthodes et approximations introduites dans la méthode de la théorie de la fonctionnelle de la densité basée sur des orbitales, concernent :

- le choix d'une fonctionnelle pour l'échange et la corrélation électronique.
- la méthode PAW pour décrire les fonctions d'ondes du système complet. Le rayon de coupure des sphères PAW est alors à préciser.
- l'approximation des coeurs gelés, dans laquelle il faut préciser, pour chaque élément chimique, le nombre d'électrons de coeur et de valence.
- la réduction de la base d'ondes planes obtenue en choisissant une énergie de coupure E_{cut} et un nombre de points \mathbf{k} à traiter.

Application de la QMD au calcul de la courbe froide et de l'Hugoniot

Sommaire

4.1	Introduction	60
4.2	Caractéristiques des simulations	60
4.2.1	Matériaux ablateurs	60
4.2.2	Conditions de calcul de la dynamique moléculaire quantique	61
4.2.3	Évolution des grandeurs thermodynamiques au cours de la simulation	63
4.3	L'isotherme à 300 K de l'ablateur CHO	64
4.3.1	Méthode de calcul	65
4.3.2	Comparaison avec les mesures expérimentales	68
4.3.3	Modélisations analytiques pour une utilisation dans les équations d'état tabulées	72
4.3.4	Effet de l'oxygène sur l'isotherme à 300 K de l'ablateur CHO	78
4.4	L'Hugoniot principale de l'ablateur CHO	82
4.4.1	Méthode de calcul	83
4.4.2	Comparaison avec l'équation d'état tabulée	86
4.4.3	Modification de la contribution ionique dans le modèle QEOS	88
4.5	Analyse de l'ablateur CHOSi	94

4.1 Introduction

Comme explicité dans le chapitre 2, nous avons retenu le modèle semi-empirique QEOS pour construire l'équation d'état tabulée des matériaux ablateurs des capsules de fusion par confinement inertiel. Nous allons maintenant utiliser la méthode de la dynamique moléculaire quantique décrite dans le chapitre 3 afin d'obtenir des données de base sur lesquelles ajuster ce modèle.

Dans un premier temps, nous regarderons l'effet de la densité sur la structure solide des ablateurs. Pour cela, nous calculerons une isotherme à 300 K qui sera ensuite validée par des mesures expérimentales dans des cellules à enclume diamant, jusqu'à une pression de 50 GPa.

Dans un second temps, nous nous intéresserons à l'effet de la température sur l'équation d'état. Nous générerons la courbe d'Hugoniot qui décrit les états atteints lors d'une compression par choc. Nous étudierons alors les phénomènes liés aux liaisons chimiques, comme la dissociation.

Nous modifierons ensuite le modèle d'équation d'état tabulée QEOS pour restituer nos calculs de dynamique moléculaire quantique. Nous ajouterons ainsi l'isotherme à 300 K dans la décomposition des contributions ioniques et électroniques, et nous modifierons la forme analytique du coefficient de Grüneisen.

Les calculs présentés ici portent sur les ablateurs plastiques synthétisés pour les capsules du laser Mégajoule. Nous nous intéressons spécifiquement au plastique non dopé et au plastique dopé avec 2,4% de silicium, que nous notons respectivement CHO et CHOSi. L'importance de ces deux matériaux dans les expériences de fusion par confinement inertiel a été explicitée dans l'introduction de ce manuscrit. Les simulations sont réalisées à l'aide du code périodique ABINIT sur les machines Tera100 du CEA/DAM.

4.2 Caractéristiques des simulations

Avant de présenter les calculs réalisés, nous allons détailler les caractéristiques des simulations, portant à la fois sur les matériaux étudiés et sur les paramètres du code de calcul ABINIT[94, 95].

4.2.1 Matériaux ablateurs

Les matériaux ablateurs composant les capsules du Laser Mégajoule sont différents des plastiques commerciaux, comme le polystyrène, formé d'une chaîne de polymères. Ils ont une structure et une composition chimique spécifique qui dépendent du processus de fabrication. Dans notre cas, ce sont des matériaux hydrocarbonés amorphes obtenus par polymérisation plasma¹ [96].

1. Glow Discharge Polymerization

La polymérisation de ces matériaux sur les coquilles sphériques du LMJ se déroule de la façon suivante. Un mandrin sphérique en poly-alpha-méthylstyrène (PAMS) est d'abord réalisé par une technique de micro-encapsulation. Des atomes faiblement énergétiques (1 – 5 eV) sont déposés sous vide sur la surface de mandrin après la dissociation du trans-2-butène (C_2H_3) sous phase gazeuse, et sa réaction avec de l'hydrogène gazeux (H_2). La dissociation se produit dans un réacteur plasma qui génère une décharge haute fréquence (46 MHz). Le mandrin est placé dans une coupelle, dont l'agitation permet au dépôt de croître de manière homogène sur toute la surface du ballon. Une fois les différents dépôts réalisés à la surface du mandrin, celui-ci est dépolymérisé par un traitement thermique sous gaz neutre. On obtient ainsi un microballon composé d'un matériau hydrocarboné (CH_x) amorphe, souvent appelé « polymère », par abus de langage. Dans le cas du plastique dopé au silicium, les dépôts de CH_xSi_y sont obtenus à l'aide de précurseurs de tétraméthylsilane (TMS), de trans-2-butène (T2B) et d'hydrogène (H_2) [97].

La composition chimique des deux matériaux d'étude a été mesurée par RBS² sur des échantillons plans de ≈ 300 nm d'épaisseur. Cette technique ne requiert aucun étalon et sa sensibilité est suffisante pour mesurer de très faibles teneurs, inférieures au pourcentage atomique. La composition atomique de chaque élément est présentée dans le tableau (4.1). Notons que l'oxygène entre dans la composition chimique de ces ablateurs en proportion non négligeable. La fraction atomique d'oxygène atteint ainsi $\approx 3\%at$ pour du plastique non dopé, et $\approx 5\%at$ lorsque l'on introduit du silicium. H. Huang *et al.* [98] ont récemment confirmé la présence d'oxygène dans les matériaux plastiques des capsules du NIF sur une profondeur de 20 – 30 μm . Ce phénomène est dû à des liaisons carbonées non saturées sur lesquelles sont absorbés des atomes d'oxygène et d'hydrogène présents dans l'air ambiant.

Afin d'être le plus proche possible des matériaux ablateurs des capsules du LMJ, nos simulations de dynamique moléculaire quantique utiliseront les fractions atomiques détaillées dans le tableau 4.1.

	ρ_0 [g/cm ³]	C	H	O	Si
CHO	$1,07 \pm 0,01$	0,408	0,56	0,032	0,00
CHOSi [2,4%at]	$1,14 \pm 0,02$	0,364	0,56	0,052	0,024

TABLE 4.1 : Densité initiale en g/cm³ et fractions atomiques de chaque élément dans les matériaux étudiés.

4.2.2 Conditions de calcul de la dynamique moléculaire quantique

Les propriétés thermodynamiques des ablateurs sont obtenues d'une méthode de dynamique moléculaire quantique. Pour ce faire, on simule l'évolution temporelle des noyaux dans l'ensemble isociné-

2. Rutherford Backscattering Spectroscopy

tique. De la même façon que dans un ensemble canonique (NVT), le nombre de particules, le volume, et la température des atomes sont constants dans cet ensemble. Une méthode de redimensionnement des vitesses assure alors le maintien de la température des noyaux [99].

Ce type de simulations étant très coûteuses en temps de calcul, nous devons travailler avec un nombre d'atomes limité, et n'avons pas la possibilité de réaliser ces simulations à l'échelle macroscopique qui exigerait $\approx 10^{23}$ atomes. Nous avons donc utilisé 250 atomes dans une boîte de simulation soumise aux conditions aux limites périodiques. Notons que de précédentes études numériques de dynamique moléculaire quantique, effectuées sur ce type de matériau [69, 70, 71, 100], ont été réalisées avec une centaine d'atomes. Nous validerons nos résultats de simulation par une comparaison avec des données expérimentales dans le chapitre 6. Le nombre d'atomes de chaque élément chimique est détaillé dans la tableau (4.2)

	C	H	O	Si
CHO	102 atomes	140 atomes	8 atomes	-
CHOSi [2,4%at]	91 atomes	140 atomes	13 atomes	8 atomes

TABLE 4.2 : Nombre d'atomes de chaque élément chimique introduit dans nos simulations comportant 250 atomes au total.

Le pas de temps de la dynamique moléculaire est déterminé en fonction des températures et des densités choisies durant la simulation. De trop petites valeurs rallongent considérablement le nombre de calculs à effectuer pour atteindre l'équilibre. De trop grandes valeurs peuvent, quant à elles, provoquer des recouvrements des sphères PAW trop importants au cours de la dynamique. Pour ces raisons, on utilise des pas de temps de 0,25 fs à basse température (pour $T < 3000$ K), et de 0,025 fs à haute température (pour $T \geq 3000$ K).

Le calcul de la contribution électronique s'effectue dans le cadre de la théorie de la fonctionnelle de la densité avec la formulation de Kohn-Sham [82], présentée dans la partie 3.3. Nous utilisons la fonctionnelle PBE-GGA [101] qui a été testée sur les molécules O_2 , H_2 , C_2 , CO , CO_2 , H_2O , et CH_4 . Les fonctions d'ondes électroniques ont été calculées dans le formalisme PAW [88, 91]. Les rayons de coupure r_{PAW} des sphères PAW sont de : $r_{PAW} = 0,80$ a_B pour l'hydrogène, $r_{PAW} = 1,10$ a_B pour le carbone, $r_{PAW} = 1,20$ a_B pour l'oxygène, et $r_{PAW} = 2,00$ a_B pour le silicium. Dans le cadre de l'approximation des coeurs gelés, on considère les orbitales de valence : $2s^22p^2$ pour le carbone, $2s^22p^4$ pour l'oxygène, et $3s^23p^2$ pour le silicium. Dans toutes les simulations, on se place au point $\Gamma = (0, 0, 0)$ dans la première zone de Brillouin, ce qui correspond à utiliser un seul point \mathbf{k} . Le tableau (4.3) montre que la pression et l'énergie interne du CHO calculées pour $\mathbf{k} = 1$ sont proches des valeurs calculées pour

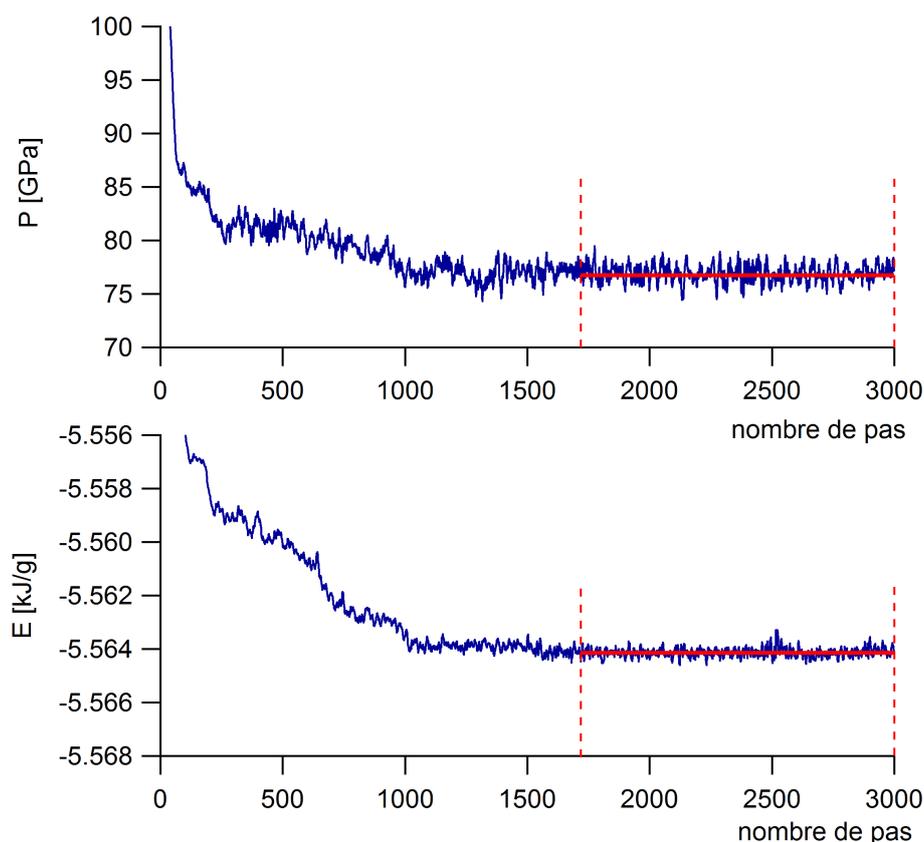


FIGURE 4.1 : Évolution de la pression et de l'énergie interne de l'ablateur CHO pour une densité de $2,461 \text{ g/cm}^3$ et une température de 300 K .

$k = 16$. Le nombre de points k considéré a ainsi peu d'impact sur les grandeurs thermodynamiques. L'énergie cinétique de coupure de la base d'ondes planes est fixée à $E_{\text{cut}} = 30 \text{ Ha}$ ($813,34 \text{ eV}$).

	$\rho = 2,461 \text{ g/cm}^3$ et $T = 300 \text{ K}$			$\rho = 3,1 \text{ g/cm}^3$ et $T = 23000 \text{ K}$		
Simulations	1 point k	16 points k	écarts	1 point k	16 points k	écarts
P [GPa]	76,98	75,90	1,4%	349,48	345,23	1,2%
E [Ha/noyau]	-3,16036	-3,16038	$< 10^{-4}\%$	-2,93438	-2,93716	0,09%

TABLE 4.3 : Valeurs de la pression et l'énergie interne du CHO calculées pour deux conditions $\rho - T$ différentes, avec un nombre de points k différents (1 ou 16).

4.2.3 Évolution des grandeurs thermodynamiques au cours de la simulation

Au cours des simulations, la densité et la température sont constantes, et on détermine, à chaque pas de temps, la variation de l'énergie totale et la pression du système. La figure 4.1 montre l'évolution de ces deux grandeurs pour une température de 300 K et une densité de $2,461 \text{ g/cm}^3$. On observe un

état de transition de 1500 pas de simulation, suivi d'un plateau. L'état de transition correspond à une période de relaxation du système initialement dans une configuration hors équilibre. Le plateau indique l'équilibre thermodynamique autour duquel l'énergie totale $E_{(\rho,T)}(t)$ et la pression $P_{(\rho,T)}(t)$ fluctuent. On moyenne ces grandeurs sur la partie d'équilibre pour accéder aux grandeurs thermodynamiques.

4.3 L'isotherme à 300 K de l'ablateur CHO

Nous commençons par calculer l'isotherme à 300 K de l'ablateur CHO. Rappelons que cette isotherme est un paramètre important de notre modèle d'équation d'état tabulée. En effet, la décomposition des contributions ioniques et électroniques de la pression totale s'écrit sous la forme :

$$P(\rho, T) = P_{\text{ion}}^{\text{th}}(\rho, T) + P_{\text{éle}}^{\text{th}}(\rho, T) + P_{\text{c.f.}}(\rho), \quad (4.1)$$

où, $P_{\text{ion/éle}}^{\text{th}}(\rho, T) = P_{\text{ion/éle}}(\rho, T) - P_{\text{ion/éle}}(\rho, T_0)$ désignent les contributions thermiques ioniques et électroniques calculées par le modèle QEOS. L'isotherme à 300 K est alors notée $P_{\text{c.f.}}(\rho)$. Elle représente 55% de la pression totale sur l'Hugoniot à 1 Mbar, 25% à 10 Mbar, et 15% à 20 Mbar.

Cette isotherme est définie comme étant une courbe froide, hypothèse qui se justifie par le régime des températures étudiées. En effet, celui-ci s'étend jusqu'à 70000 K dans nos simulations, et jusqu'à plusieurs millions de Kelvin dans les expériences de fusion par confinement inertiel. Les effets thermiques à température ambiante sont alors négligeables devant les températures mises en jeu. Dans ce cas, l'énergie libre est égale à l'énergie interne $E_{\text{c.f.}}$, et est calculée à partir de la pression $P_{\text{c.f.}}$, suivant :

$$P_{\text{c.f.}}(\rho) = \rho^2 \frac{dE_{\text{c.f.}}(\rho)}{d\rho} \quad (4.2)$$

La connaissance de la courbe pression-densité à 300 K permet ainsi de déterminer toutes les composantes froides de l'équation d'état.

Notons que le calcul de l'isotherme à 300 K nécessite de reproduire la structure solide du matériau étudié. Il faut alors connaître l'arrangement des atomes entre eux, ainsi que la nature des liaisons interatomiques. Dans le cas de l'ablateur CHO, la seule information que nous ayons est sa nature amorphe. Recréer une structure amorphe caractéristique de l'ablateur CHO constitue ainsi la principale difficulté du calcul de l'isotherme à 300 K.

Différentes méthodes peuvent être employées pour recréer cette structure amorphe. Nous pouvons notamment citer les travaux de Hamel *et al.* [71]. Des calculs de QMD ont été effectués sur l'ablateur CHO et une méthode a été proposée pour générer une structure solide à température ambiante. Cette structure est obtenue en assemblant, de façon aléatoire, des chaînes de styrène, éthylène et propylène. Ces chaînes servent à la création de molécules de stoechiométries $\text{C}_{25}\text{H}_{34}$ et $\text{C}_{50}\text{H}_{68}$. Elles sont ensuite

assemblées pour former une structure solide de quelques centaines d'atomes. Cette méthode présente comme inconvénient le risque de créer un super-cristal, qui introduirait des effets cristallins non caractéristiques de l'ablateur. Par ailleurs, l'oxygène n'est pas pris en compte. Enfin, S. Hamel n'a pas réalisé un calcul de la courbe froide à partir de cette structure. Celle-ci a été chauffée pour simuler un état liquide. Une courbe froide a été extraite de ces calculs, en extrapolant les pressions liquides à température nulle. Cette technique ne permet pas de prendre en compte les effets de structure sur la courbe froide et nous procéderons différemment.

4.3.1 Méthode de calcul

On génère une structure amorphe pour l'ablateur CHO dans les conditions standard de température et de densité à l'aide d'une trempe. Celle-ci est réalisée à la densité solide expérimentale ($\rho_0 = 1,07 \text{ g/cm}^3$) pour une température variant par palier de 3000 K jusqu'à 300 K. La trempe simulée ne permet pas a priori de reproduire toutes les étapes de la polymérisation en phase plasma. On choisit néanmoins cette méthode pour générer une structure amorphe avec un nombre réduit d'atomes. Les différents seuils de température sont choisis de façon arbitraire pour permettre d'atteindre plus rapidement l'équilibre à 300 K. La validation de cette méthode de calcul se fera par une comparaison avec des mesures statiques dans des cellules à enclume diamant.

La trempe se déroule de la façon suivante. Tout d'abord, les atomes sont mélangés dans la boîte de simulation à 3000 K. Le volume est fixé avant le début de la simulation en imposant une dimension appropriée à la boîte de simulation cubique. Une fois l'équilibre atteint à 3000 K, on réduit brutalement la température à 2000 K, puis à 1000 K, et à 300 K. À chacun de ces seuils de température, le système moléculaire évolue dans l'ensemble NVT sur ≈ 4 ps, avec un pas de temps de 0,25 fs. L'équilibre obtenu est ensuite vérifié dans un ensemble NVE pendant ≈ 1 ps. Les moyennes sont calculées à partir des positions et des vitesses des configurations à l'équilibre. Chaque calcul de dynamique moléculaire quantique à densité et température constantes dure entre 3 et 4 semaines sur 256 processeurs.

On génère ensuite l'isotherme à 300 K jusqu'à 10 fois la densité solide (ρ_0), par une compression de la structure précédemment équilibrée à ρ_0 et $T_0 = 300$ K. Pour cela, on utilise les coordonnées atomiques réduites d'une configuration d'équilibre à ρ_0 , et on change la densité du système ($\rho > \rho_0$) par un redimensionnement de la boîte de simulation. A chaque densité, le système évolue sur quelques picosecondes. La pression et l'énergie interne sont moyennées sur un intervalle de temps de 1 ps. L'amplitude des fluctuations statistiques est de $\approx 10\%$ à basse pression, et est inférieure à 1% à plus haute pression ($P > 100$ GPa). Pour s'assurer que les pressions obtenues sont reproductibles en compression, on simule à nouveau quelques-uns des états pression-densité, à partir de configurations atomiques à l'équilibre le

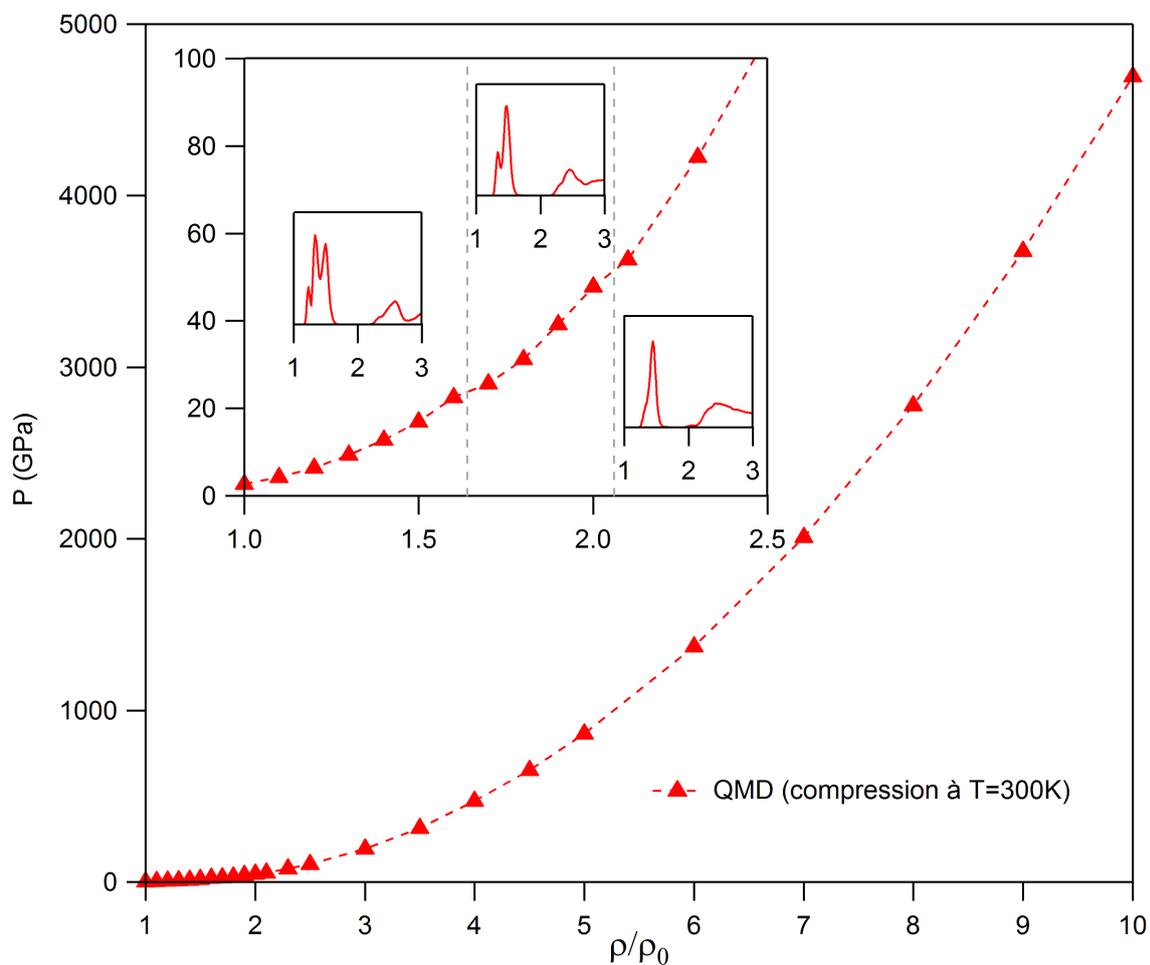


FIGURE 4.2 : Isotherme à 300 K de l'ablateur CHO dans le plan pression-compression (ρ/ρ_0) construite par la dynamique moléculaire quantique à partir d'une configuration atomique d'équilibre dans les conditions standard de températures et de densités, à 300 K et ρ_0 . Le graphique inséré est un zoom à basse compression. On observe deux transitions de phases à $1,7\rho_0$ et $2,1\rho_0$ correspondant à une réorganisation de la structure des atomes de carbone. Les fonctions de distributions radiales entre atomes de carbone caractéristiques de ces trois phases sont présentées dans le graphique inséré.

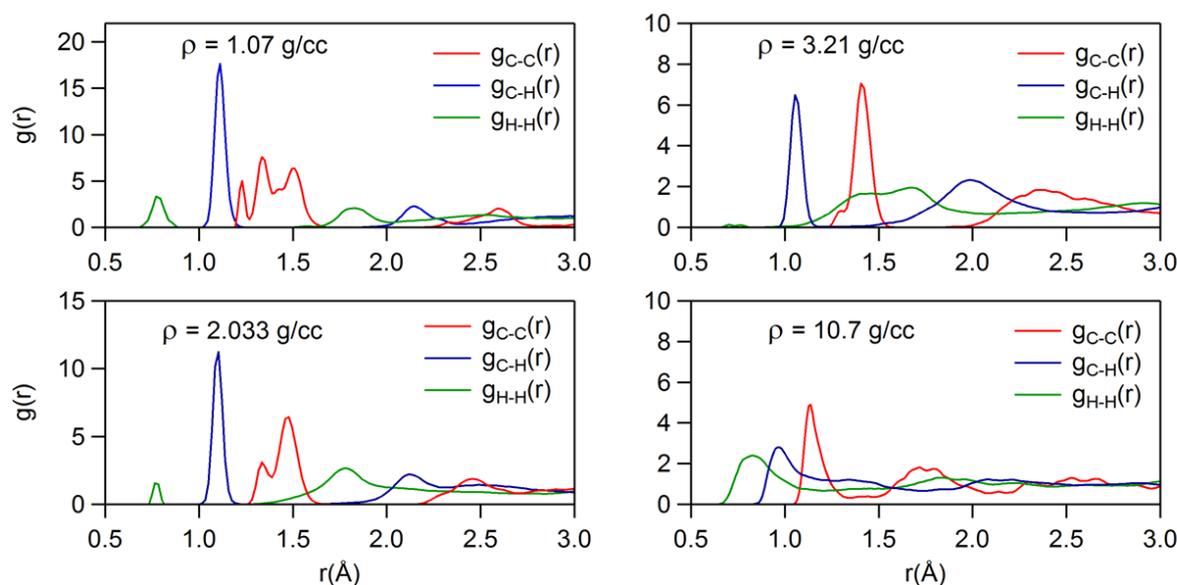


FIGURE 4.3 : Fonctions de distributions radiales (RDF) pour 4 densités le long de l'isotherme à température ambiante du CHO, qui a été construite en comprimant une structure générée, dans les conditions normales de température et de densité. La principale différence se trouve au niveau des RDF entre les atomes de carbone. Les trois pics principaux, visibles à la densité solide $\rho_0 = 1,07 \text{ g/cm}^3$, disparaissent progressivement lorsque l'on comprime la structure ionique à température constante ($T = 300 \text{ K}$).

long de l'isotherme. On vérifie ainsi que les états simulés sont indépendants de la structure atomique de départ. D'une configuration d'équilibre à $2 \times \rho_0$, nous avons calculé la pression à $3 \times \rho_0$ et $4 \times \rho_0$. Les écarts, en pourcentage, par rapport à la pression obtenue d'une configuration d'équilibre à ρ_0 sont respectivement de 0,15% et 0,65%. D'une configuration d'équilibre à $3 \times \rho_0$, nous avons obtenu un écart de 0,21% à $4 \times \rho_0$. D'une configuration d'équilibre à $4 \times \rho_0$, nous avons obtenu un écart de 0,16% à $5 \times \rho_0$. Ce test montre une reproductibilité de la pression en compression de $\approx 0,6\%$. L'isotherme à 300 K calculée par cette méthode est présentée sur la figure 4.2.

Analyse de la structure des systèmes simulés : L'analyse des fonctions de distributions radiales (RDF³) entre les atomes, notées $g(r)$, nous donne des informations sur la structure atomique du système étudié. La figure (4.3) indique les RDF aux densités $\rho_0 = 1,07 \text{ g/cm}^3$, $1,9 \times \rho_0$, $3 \times \rho_0$, et $10 \times \rho_0$ le long de l'isotherme à 300 K.

À la densité solide (ρ_0), les fonctions de distribution radiale sont égales à zéro pour de faibles distances interatomiques, ce qui indique la présence d'un volume exclu autour des noyaux du fait des répulsions de coeur. Lorsque la distance interparticulaire moyenne augmente, un pic très élevé et par-

faitement défini est visible, suivi d'un second pic moins prononcé. À plus longue distance, les RDF finissent par tendre vers 1. La présence de ces pics indique un ordre à courte distance qui peut se traduire par des liaisons chimiques entre les atomes du système. L'absence d'ordre à grande distance est compatible avec la nature amorphe du milieu. Les fonctions de distributions radiales entre les atomes de carbone-hydrogène et hydrogène-hydrogène présentent un premier pic à une distance moyenne de 1,12 Å et 0,78 Å, ce qui correspond à des liaisons C–H et H–H dans les conditions normales de température et de densité [102]. La RDF entre les atomes de carbone montre un triplet de pics principaux. La localisation de ces pics correspond à des liaisons carbone-carbone simples à 1,53 Å (C–C), doubles à 1,34 Å (C=C), et triples à 1,23 Å (C≡C), conformément aux valeurs données dans les Handbook de chimie [102].

Le système obtenu dans les conditions normales est donc structuré et présente une série de pics sur les RDF caractéristiques de liaisons chimiques. Lorsque l'on augmente la densité du système, les pics s'estompent sous l'effet de la compression, ce qui indique que les atomes se dissocient. Sur les fonctions de corrélations entre les atomes de carbone, les pics correspondant aux liaisons C≡C triples, et C=C doubles disparaissent tour à tour lors de la compression. Seul le pic localisé à la distance caractéristique des liaisons C–C simples est visible à haute densité. Deux discontinuités sont visibles dans la courbure de l'isotherme dans le plan pression-densité sur la figure (4.2) aux densités $1,7 \times \rho_0$ et $2,2 \times \rho_0$. Ces discontinuités correspondent aux disparitions des liaisons carbone-carbone triples pour la première, et doubles pour la seconde. À cause du faible nombre d'atomes d'oxygène (8 atomes) dans la cellule, l'analyse des fonctions de distributions radiales entre l'oxygène et les autres espèces n'est pas significative.

4.3.2 Comparaison avec les mesures expérimentales

Une étude expérimentale des propriétés de compression statique de l'ablateur CHO a été réalisée à température ambiante par T. Plisson [103, 104]. Cette étude a permis d'obtenir des mesures de la structure et de l'isotherme à 300 K.

La structure du CHO a été étudiée par diffraction de rayons X, qui est une méthode usuelle pour caractériser la structure de matériaux cristallins, ou de liquides dans des cellules à enclume diamant. Un faisceau de rayons X est envoyé sur l'échantillon et une plaque image recueille le signal diffracté. La moyenne azimutale du signal en 2D fournit le profil de diffraction, à partir duquel on obtient des informations sur la structure microscopique de l'échantillon. Dans le cas de l'ablateur CHO, aucun pic de diffraction n'est visible lorsque le matériau est soumis à une pression allant jusqu'à 20 GPa. Il n'y a donc pas d'ordre cristallin à grande distance, ce qui est cohérent avec la nature amorphe du CHO. Des

liaisons chimiques existent seulement à courte distance.

Une seconde technique d'analyse a permis de mesurer l'isotherme à température ambiante de l'ablateur CHO, jusqu'à une pression de 50 GPa. Cette technique consiste à mesurer directement le volume du plastique CHO présent dans la cellule. On mesure la surface de l'échantillon, par observation visuelle au microscope, et son épaisseur par une méthode d'interférence en lumière blanche. La principale difficulté de cette technique réside dans la mesure de l'épaisseur de l'échantillon. On utilise, pour cela, les têtes parallèles des diamants, qui jouent le rôle d'un interféromètre de Fabry-Pérot. Un faisceau incident subit une modulation de son spectre, dont la période est reliée au produit de l'épaisseur de l'échantillon par l'indice du matériau. Ainsi, à partir de la connaissance de la courbe de variation de l'indice de réfraction en fonction de la pression, on peut déterminer l'épaisseur de l'échantillon comprimé. N'ayant aucune information sur l'indice du CHO sous compression, un matériau de référence est introduit dans la cellule à enclume diamant à côté du matériau d'étude. L'épaisseur, imposée par la tête du diamant, est identique dans les deux échantillons. Le NaCl a été choisi comme référence, son indice de réfraction [105, 106] et son équation d'état [107] étant des références connues. L'analyse de l'échantillon de référence nous permet ainsi d'obtenir directement l'épaisseur, et l'indice du CHO comprimé. La pression qui s'exerce sur les échantillons est obtenue par une méthode de fluorescence du rubis.

Les résultats expérimentaux sont comparés aux simulations de dynamique moléculaire quantique sur la figure (4.4). Les pressions mesurées dans les cellules à enclume diamant sont inférieures aux prédictions numériques (triangles rouges), pour des densités comprises entre ρ_0 et $1,7 \times \rho_0$. Les deux courbes se rejoignent ensuite à plus haute densité.

Pour comprendre les différences observées à basse densité, il faut s'intéresser à l'isotherme calculée par la dynamique moléculaire quantique. Celle-ci est obtenue en comprimant une structure amorphe, générée à ρ_0 et T_0 . La structure de départ comporte des liaisons carbone-carbone simples, doubles, et triples, comme expliqué dans la section précédente. Lorsque l'on comprime cette structure, les atomes se dissocient. Une transition de phase est visible pour une densité de $\approx 1,7 \times \rho_0$. Elle correspond à la disparition des liaisons $C \equiv C$ triples. La comparaison avec les mesures en cellule à enclume diamant et les simulations montre donc que ces liaisons ne sont pas présentes dans la structure solide de l'ablateur CHO. Les pressions calculées après la disparition de ces liaisons étant en accord avec les mesures, on en déduit que la structure atomique type du plastique CHO est composée de liaisons carbone-carbone simples et doubles.

Afin de valider nos hypothèses sur la structure atomique caractéristique du CHO, nous allons tester

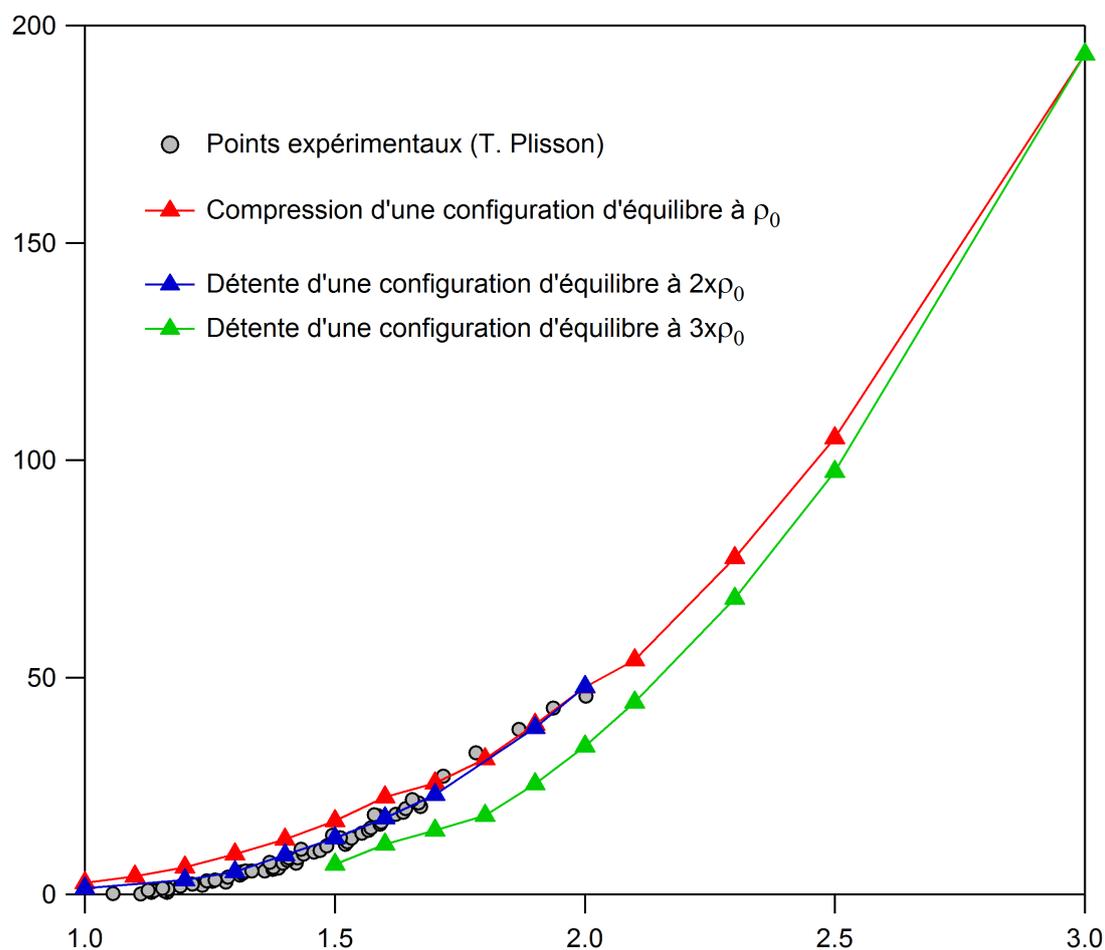


FIGURE 4.4 : Isothermes à 300 K du CHO obtenues à partir des deux méthodes présentées dans ce chapitre, en compression et en détente. Chaque triangle représente un état pression-densité à l'équilibre dans un ensemble (NVT). La couleur rouge correspond aux états calculés en comprimant une structure amorphe générée dans les conditions normales de température et de densité. Les couleurs bleue et verte font respectivement références à la méthode consistant à détendre une configuration atomique d'équilibre sur l'isotherme à partir de $2 \times \rho_0$ et $3 \times \rho_0$. Les mesures expérimentales ont été ajoutées, en gris.

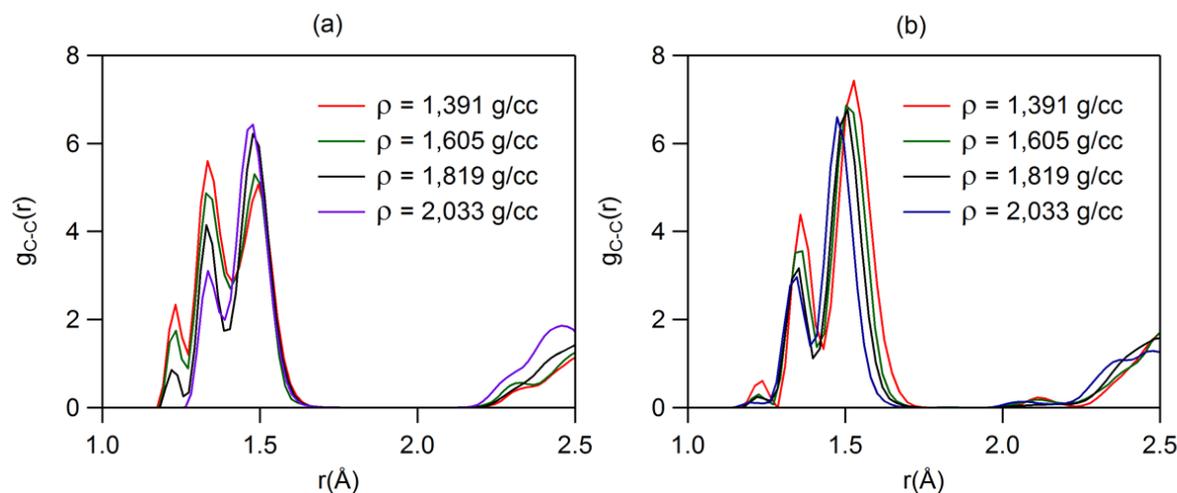


FIGURE 4.5 : Fonctions de distributions radiales ($g(r)$) entre les atomes de carbones à différentes densités obtenues par QMD. La méthode présentée en (a) comprime une configuration atomique stable dans les conditions normales de densités et de températures. On remarque que les deux premiers pics diminuent lorsque la densité augmente, ce qui est caractéristique de la dissociation. La méthode présentée en (b) détend une configuration atomique équilibrée à $2\rho_0$ par la méthode (a). Le premier pic n'est pas recréé par cette méthode. La nature chimique du système n'est pas changée lorsque augmente l'espace entre les atomes.

une méthode de calcul à l'opposé de la méthode précédente, qui consistait à comprimer une configuration atomique. Dans ce cas, on utilise des coordonnées atomiques réduites sur l'isotherme et on suit l'évolution des fonctions de distribution radiale lorsque l'on augmente l'espace entre les atomes.

Tout d'abord, on utilise une configuration atomique d'équilibre à la densité $2 \times \rho_0$ sur l'isotherme qui est en accord avec les mesures expérimentales. On augmente ensuite la taille de la boîte de simulation de façon à diminuer la densité du système. On fait évoluer la dynamique moléculaire sur ≈ 2 ps dans l'ensemble isocinétique. Les pressions et les énergies internes varient, et se stabilisent à l'équilibre après ≈ 200 fs.

Les pressions obtenues grâce à cette méthode restituent bien les mesures expérimentales entre ρ_0 et $2 \times \rho_0$ (figure (4.4)). Les fonctions de distributions radiales (RDF) entre les atomes de carbone sont présentées sur la figure 4.5 (b). Les deux pics présents sur la RDF des atomes de carbone à $2 \times \rho_0$ sont conservés. Il n'y a pas de modification notable contrairement à ce que l'on observe en compression sur la figure 4.5 (a). En particulier, on remarque que lors de la détente le pic correspondant aux liaisons carbone-carbone triples $C \equiv C$ n'est pas reformé à basse densité. Les liaisons $C-C$ et $C=C$ sont uniquement présentes sur les RDF des états pression-densité qui restituent les mesures expérimentales, et sont donc bien représentatives de la structure du polymère CHO.

On effectue ensuite les mêmes calculs en partant d'une configuration atomique d'équilibre à $3 \times$

ρ_0 . À cette densité, seul le pic correspondant aux liaisons carbone-carbone simples est présent sur la fonction de distribution radiale de la figure (4.3). De la même façon que pour la précédente détente à $2 \times \rho_0$, on n'observe pas d'évolution dans les fonctions de distribution radiale des atomes de carbone lors de la détente. Les liaisons initiales sont conservées à basse densité. Les pressions calculées sont indiquées sur la figure (4.4). Elles ne restituent pas les mesures. Les liaisons C–C seules ne sont donc pas représentatives de la structure du CHO.

En conclusion, nous n'avons pas créé des liaisons en détente lors de nos simulations sur quelques picosecondes. De plus, les pressions calculées en détente ne sont pas reproductibles. Celles obtenues à partir d'une configuration atomique d'équilibre à $2 \times \rho_0$ sont différentes que celles obtenue à partir de $3 \times \rho_0$. Bien que la détente d'une configuration atomique à l'équilibre à $2 \times \rho_0$ restituent localement l'isotherme à 300 K, nous préférons générer une structure amorphe dans les conditions normales plus ou moins représentative de l'ablateur CHO, puis la comprimer pour construire l'isotherme. Les pressions obtenues de cette façon sont reproductibles quelles que soient les conditions initiales du système. De plus, les écarts observés à basse pression ($P < 30$ GPa) sont négligeables sur l'ensemble de la courbe froide ($P < 4600$ GPa).

Conclusions :

Nous avons présenté une méthode pour calculer l'isotherme à 300 K de l'ablateur CHO. Cette méthode consiste à générer une structure amorphe dans les conditions normales, à l'aide d'une trempe d'une température de 3000 K, jusqu'à 300 K. On comprime ensuite la structure obtenue, sans toucher à la température. La compression se fait à partir d'un redimensionnement de la boîte de simulation dans l'ensemble NVT, ce qui a pour conséquence de fixer la densité du système simulé.

Une comparaison avec des mesures expérimentales, et l'analyse des fonctions de distributions radiales, nous a permis d'obtenir des informations sur les liaisons interatomiques présentes dans la structure de l'ablateur. Les résultats indiquent que l'ablateur CHO est un squelette hydrocarboné amorphe, composé de liaisons carbone-carbone simples et doubles.

4.3.3 Modélisations analytiques pour une utilisation dans les équations d'état tabulées

Nous disposons de points (P, ρ) sur l'isotherme à 300 K de l'ablateur CHO. Afin d'introduire ces données dans l'équation d'état tabulée, nous allons ajuster un modèle d'équation d'état paramétrique sur les points obtenus. Ces modèles analytiques pourront directement être utilisés dans la décomposition des contributions à la pression totale (4.1).

4.3.3.1 Équations d'état paramétriques

Plusieurs modèles semi-empiriques d'équation d'état ont été développés pour calculer une courbe froide. Ces modèles fournissent la pression en fonction de la densité, à partir de la seule connaissance de la densité solide ρ_0 , du module de compressibilité K_0 , et de ses dérivées. Ils sont construits à partir de la théorie de l'élasticité de la mécanique du solide, ou d'une modélisation des potentiels interatomiques [46].

Basée sur la théorie de l'élasticité, l'équation d'état de Birch-Murnaghan au troisième ordre (BM3) est fréquemment utilisée pour traiter la compression. Elle utilise un développement au troisième ordre de l'énergie libre en série entière des contraintes eulériennes. Les pressions sur l'isochore sont calculées par :

$$P_{c.f.}^{BM3}(x) = 1,5K_0(x^{-7} - x^{-5}) [1 + 0,75(K'_0 - 4)(x^{-2} - 1)], \quad (4.3)$$

où $x = (\rho_0/\rho)^{1/3}$.

Les autres formes d'équation d'état paramétrique considèrent les interactions entre les plus proches voisins d'un solide idéal à température nulle pour déterminer un potentiel interatomique effectif. Le premier modèle, que nous avons utilisé, a été proposé par Vinet [108], et est dérivé d'un potentiel effectif de Rydberg. Cette équation d'état donne la relation pression-densité suivante :

$$P_{c.f.}^{Vinet}(x) = 3K_0 \frac{1-x}{x^2} \exp \left\{ \frac{3}{2}(K'_0 - 1)(1-x) \right\}. \quad (4.4)$$

Cette forme d'équation d'état a ensuite été modifiée par Holzapfel [109], afin de corriger le comportement fortement asymptotique à haute compression. Un développement polynomial au second ordre est ajouté, et permet d'obtenir la limite de Thomas-Fermi pour une compression infinie. Dans cette paramétrisation, appelée AP2, la pression est calculée par :

$$P_{c.f.}^{AP2}(x) = 3K_0 \frac{1-x}{x^5} \exp \{a_0(1-x)\} (1 + a_2x(1-x)), \quad (4.5)$$

avec $a_2 = 3/2(K'_0 - 3) - a_0$.

On ajuste ces modèles d'équation d'état paramétrique sur les points de dynamique moléculaire quantique. On les contraint alors avec les valeurs expérimentales de ρ_0 et K_0 . Les autres paramètres sont libres.

Dans le cas de l'ablateur CHO, nous ne connaissons pas explicitement la valeur de K_0 . Cependant, la vitesse du son c_0 a été mesurée à 2667 ± 28 m/s par des oscillations Brillouin⁴. Le module de com-

4. L'utilisation des oscillations Brillouin est une méthode expérimentale pour mesurer la vitesse acoustique dans des matériaux transparents. Une impulsion laser crée une onde acoustique à la surface d'un échantillon. Cette impulsion se propage dans le matériau et se réfléchit aux interfaces. L'utilisation d'une seconde impulsion laser, qui se réfléchit à la fois sur la surface

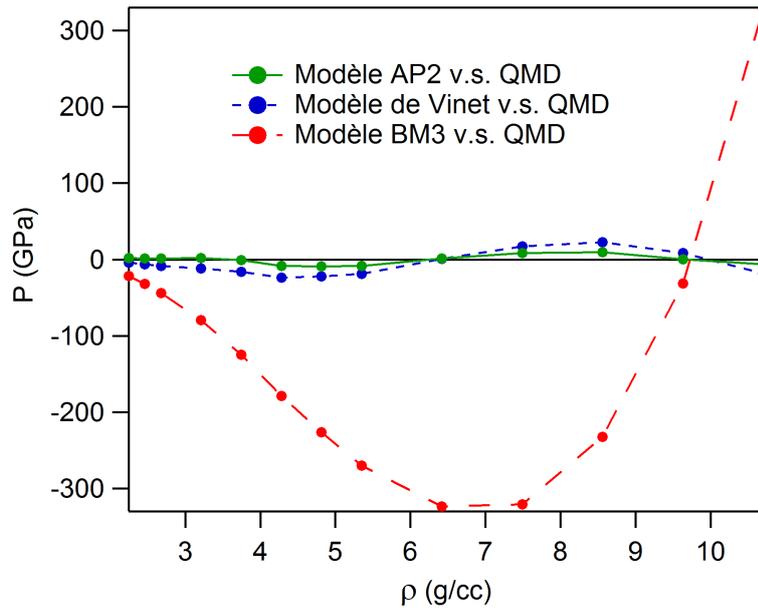


FIGURE 4.6 : Différence en pression entre les trois modèles d'équations d'état paramétriques utilisés dans ce chapitre et les points simulés par la QMD.

pressibilité s'exprime en fonction de la vitesse du son, suivant la relation :

$$c_0 = \sqrt{\left. \frac{dP_{c.f.}}{d\rho} \right|_{\rho_0}} = \sqrt{\frac{K_0}{\rho_0}}, \quad (4.6)$$

ce qui nous donne $K_0 = c_0^2 \times \rho_0 = 7,6108$ GPa.

La figure (4.6) présente les différences en pression entre les modèles utilisés et les valeurs simulées par la dynamique moléculaire quantique. La forme BM3 ne permet pas d'ajuster les valeurs des points QMD sur l'isotherme, à partir de paramètres physiques pour ρ_0 et K_0 . Le modèle d'équation d'état de Vinet donne de meilleurs résultats, avec $K'_0 = 6,488$. La différence entre les pressions ajustées et les points QMD indique un écart maximum de 23 GPa. L'équation d'état proposée par Holzapfel (AP2) fournit les plus petits écarts en pression sur l'ensemble de la courbe froide, avec une déviation maximum de 9 GPa. Elle est donc choisie pour modéliser les points de dynamique moléculaire quantique dans les parties suivantes. Les paramètres obtenus sont : $K'_0 = 8,3204$ GPa, et $a_0 = 2,2948$ GPa.

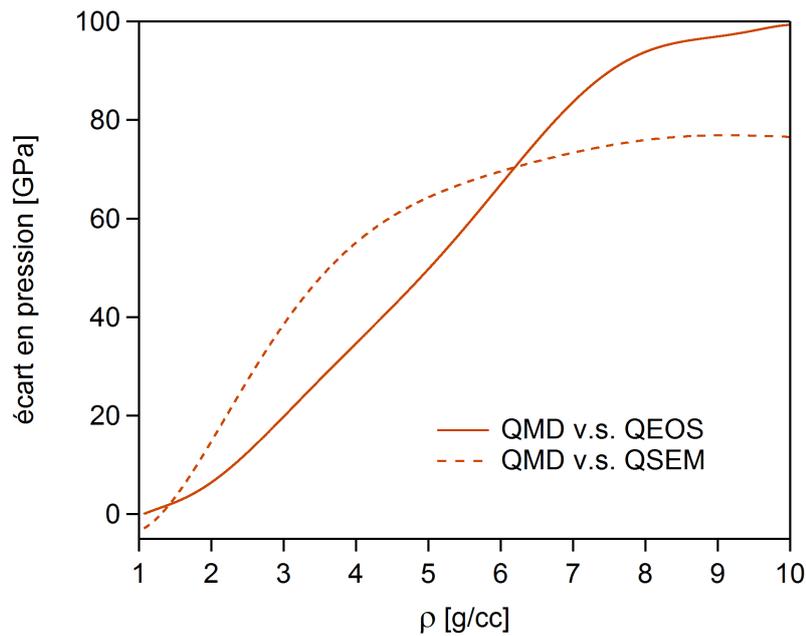


FIGURE 4.7 : Différence sur l'isotherme à 300 K entre les pressions calculées par la dynamique moléculaire quantique et les pressions issues des modèles QEOS et QSEM, présentés sur la figure 4.8.

4.3.3.2 Comparaison avec les modèles analytiques utilisés dans les tables d'équation d'état

On compare la forme analytique obtenue avec les valeurs données par les modèles d'équations d'état tabulées QEOS [45] et QSEM⁵ [110]. Dans le modèle QEOS, la thermodynamique des atomes est décrite par le modèle de Debye, et les électrons utilisent le modèle semi-classique de Thomas-Fermi. Une correction semi-empirique de Barnes est appliquée à la pression totale. Ces modèles sont présentés dans le chapitre 2. De la même manière, la contribution ionique de l'équation d'état QSEM est calculée par le modèle de Debye. Cependant, contrairement au modèle QEOS, les électrons sont traités à l'aide d'un modèle d'atome moyen quantique. On utilise alors l'option Inferno [111] du code VAAQP⁶ [55], pour obtenir la contribution électronique des éléments individuels du mélange. Une loi de mélange iso-pression iso-énergie interne donne ensuite la contribution électronique totale de l'ablateur. Les pressions et les énergies internes sont directement données par le code, sans appliquer de correction.

La figure (4.8) présente les isothermes issues des deux modèles analytiques, ainsi que la forme d'EOS AP2 qui a été ajustée sur les points de dynamique moléculaire quantique. La courbe froide calculée par S. Hamel [71] et les mesures de T. Plisson [103] ont été ajoutées. Les pressions issues de l'échantillon et sur l'onde acoustique se déplaçant dans le matériau, crée des interférences, dont la période est reliée à la vitesse du son.

5. QSEM est l'acronyme de « Quantum SemiEmpirical Model », qui est un modèle d'équation d'état tabulée en cours de développement au CEA.

6. Variational Average Atom in Quantum Plasmas

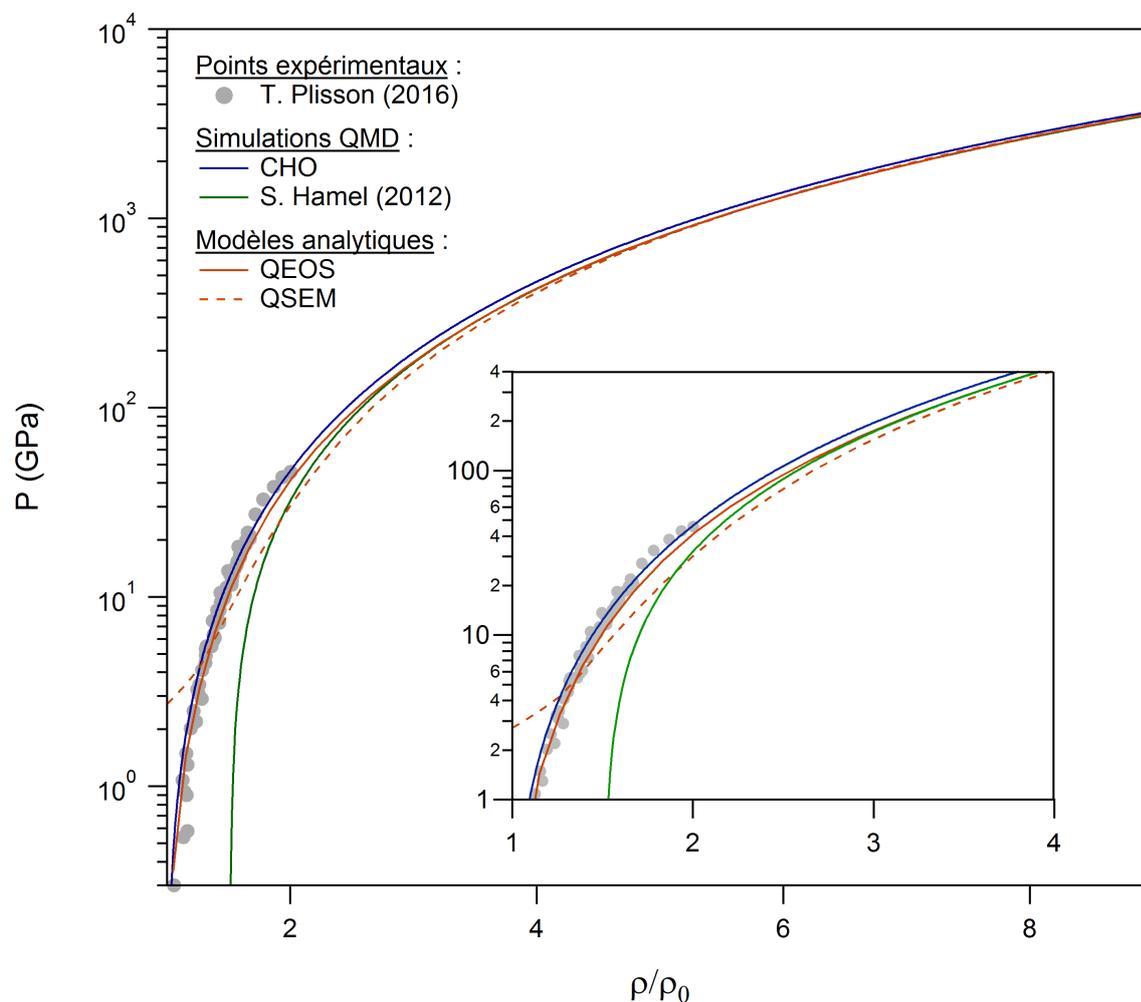


FIGURE 4.8 : Isothermes à 300 K du CHO issues de la QMD et des modèles implémentés dans les tables d'équation d'état. La courbe bleue représente l'ajustement AP2 des points QMD calculés dans la section 4.3.1. Les courbes oranges correspondent aux modèles théoriques : la courbe en trait plein provient du modèle QEOS, la courbe en pointillé du modèle QSEM. La courbe froide, obtenue par S. Hamel [71] à partir d'une extrapolation à $T = 0$ K de calculs de QMD dans l'état liquide, est indiquée en vert. Les mesures expérimentales de T. Plisson [103] sont en gris.

de la dynamique moléculaire quantique sont en accord avec les mesures expérimentales. Les pressions calculées par les modèles d'équation d'état sont plus basses que les pressions issues des calculs *ab initio*. La différence en pression, entre nos calculs et les modèles, augmente avec la compression, comme indiqué sur la figure (4.7). Pour le modèle QSEM, les écarts en pression se stabilisent autour de 70 GPa à $5 \times \rho_0$. Pour le modèle QEOS, les pressions sur l'isotherme sont proches des pressions calculées par la dynamique moléculaire quantique à basse densité. La différence entre les deux courbes augmente ensuite lentement et se stabilise autour de 70 GPa à 8 g/cm^3 , ce qui correspond à un écart de 4% sur la pression.

Notons que la courbe froide calculée par S. Hamel ne restitue pas les mesures. Il la désigne d'ailleurs comme « composante indépendante de la température » plutôt que comme une véritable courbe froide. Comme expliqué en introduction de cette partie, la courbe froide de S. Hamel est issue de calculs de dynamique moléculaire quantique réalisées dans un état liquide, pour des températures supérieures à 4000 K, et des densités supérieures à $1,8 \text{ g/cm}^3$. À chaque densité, la pression à $T = 0 \text{ K}$ est alors extrapolée des pressions liquides, sous l'hypothèse de linéarité des isochores. Une équation d'état de Birch-Murnaghan a ensuite été ajustée sur les points de QMD à température nulle. Cette courbe froide coïncide avec le modèle d'atome moyen QEOS pour des densités supérieures à $2,5 \text{ g/cm}^3$. Aux plus basses densités, les pressions obtenues sont bien inférieures aux modèles et ne permettent pas de restituer les mesures. Ce résultat est cohérent avec la nature liquide des états simulés, dans lesquels les liaisons chimiques sont au moins partiellement dissociées.

Les différences en pression entre les courbes froides peuvent modifier les prédictions de chronométrie des chocs qui doivent être maîtrisées pour comprimer les capsules de FCI de façon quasi-isentropique. Les pressions froides et thermiques étant additives sur l'Hugoniot, on peut supposer en première approximation que les écarts entre les courbes froides vont se retrouver sur l'Hugoniot, à contribution thermique égale. En utilisant cette hypothèse, on estime la différence sur la chronométrie des chocs résultant du choix d'une courbe froide. Par exemple, les conditions du premier choc d'une capsule de FCI sont données par la pression d'ablation, qui est approximativement autour de 250 GPa, à 3 g/cm^3 . À cette densité, la différence en pression entre les modèles analytiques et les calculs de dynamique moléculaire quantique sont d'environ 30 GPa, ce qui correspond à un écart sur les vitesses de choc de 1 km/s. Si l'on considère que le premier choc se propage dans une couche d'ablateur de $100 \mu\text{m}$ environ avant d'être transmis dans le D-T cryogénique, on obtient une différence sur la chronométrie du choc de 250 ps environ, ce qui est bien supérieur à la tolérance de $\pm 50 \text{ ps}$ acceptée pour le dimensionnement des capsules [7].

Conclusions :

Nous avons comparé l'isotherme à 300 K issue de nos calculs de dynamique moléculaire quantique avec les modèles analytiques d'atome moyen. Les écarts observés entre ces modèles ont un effet sur la synchronisation des chocs dans une capsule de FCI. Nous privilégierons l'isotherme à 300 K calculée par la QMD, car elle se base sur une modélisation *ab initio* de la matière. Les interactions interatomiques sont alors calculées à partir des lois de la mécanique quantique, sans paramètres ajustés.

4.3.4 Effet de l'oxygène sur l'isotherme à 300 K de l'ablateur CHO

De récents travaux [98, 112] ont montré l'importance de prendre en compte la présence d'oxygène dans la composition chimique des ablateurs des capsules de FCI. Tout d'abord, les atomes d'oxygène affectent la vitesse de choc durant l'implosion de la capsule, en contribuant à l'absorption des rayons X [98]. Ensuite, l'oxygène contribue 3 à 5 fois plus à la croissance des instabilités hydrodynamiques que la rugosité de la surface du microballon [112].

Afin d'étudier les effets de l'oxygène sur l'équation d'état de l'ablateur CHO, on construit une isotherme à 300 K pour un système de composition chimique $\text{CH}_{1,50}$, sans oxygène que l'on nommera CH. On utilise la même méthode que pour l'ablateur CHO, en compression. Pour cela, on génère une structure amorphe dans les conditions normales de température et de densité ($T_0 = 300$ K, et $\rho_0 = 1,07$ g/cm³). Les 250 atomes sont mélangés à une température de 3000 K pendant 2 ps environ, puis refroidis à 2000 K, 1000 K, et 300 K dans un ensemble isocinétique.

Les fonctions de distributions radiales des deux systèmes à la densité $\rho_0 = 1,07$ g/cm³ sont présentées sur la figure (4.9). Les distances des premiers pics des liaisons C–H à 1,12 Å, et H–H à 0,78 Å sont identiques sur les deux structures. La principale différence se situe au niveau des liaisons entre les atomes de carbone. Le premier pic observable à 1,23 Å, que l'on a associé à des liaisons C≡C triples sur le CHO n'est pas visible sur le CH. Les deux autres pics, correspondant aux liaisons C–C simples et C=C doubles, sont visibles à 1,34 Å, et à 1,53 Å. Nous avons montré précédemment que les liaisons triples n'étaient pas caractéristiques des liaisons se formant dans la structure amorphe du CHO. Ces résultats suggèrent que la structure atomique trempée pour le système sans oxygène est très proche de la structure de l'ablateur CHO.

On construit l'isotherme à température ambiante du CH, jusqu'à 10,7 g/cm³. Pour cela, on commence une configuration atomique d'équilibre à T_0 et ρ_0 . On initialise le calcul avec les coordonnées réduites des atomes de la configuration choisie puis on change la densité du système par un redimensionnement de la boîte de simulation. Le CH n'ayant pas la composition chimique exacte de l'ablateur CHO, on ne connaît pas les valeurs expérimentales de la densité solide ρ_0 , et de la vitesse du son c_0 de ce

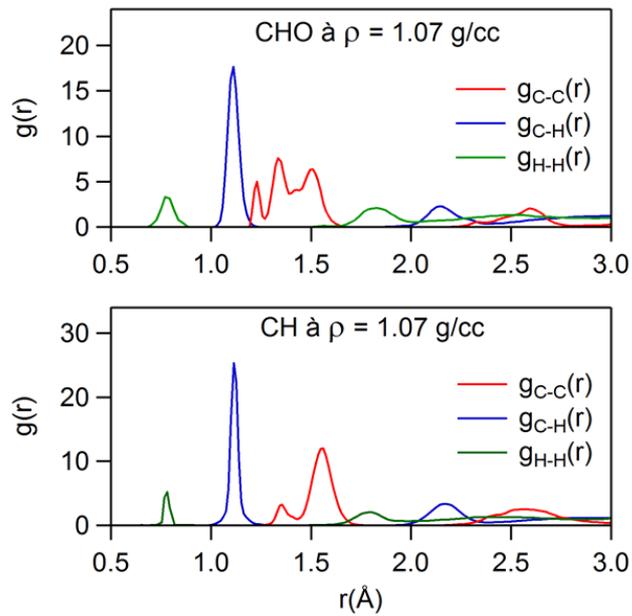


FIGURE 4.9 : Fonctions de corrélations radiales entre des atomes de carbone-carbone, carbone-hydrogène, hydrogène-hydrogène pour une configuration chimique sans oxygène en (a), et la configuration chimique connue de l'ablateur CHO en (b).

système. Un modèle d'équation d'état paramétrique est ajusté sur les points de dynamique moléculaire quantique, ce qui nous permet de déterminer les valeurs de ρ_0 et c_0 du CH. Dans un régime de basse densité, le modèle d'équation d'état de Vinet fournit de bons résultats, et est utilisé sur les points QMD du CH inférieurs à $2,14 \text{ g/cm}^3$. On obtient ainsi la densité solide du système CH, ainsi que le module de compressibilité, et sa dérivée. Ces valeurs sont : $\rho_0 = 1,0082 \text{ g/cm}^3$, $K_0 = 8,8665 \text{ GPa}$, $K'_0 = 6,2693$. La vitesse du son correspondante est de $2965,5 \text{ m/s}$. Ces valeurs sont proches des valeurs mesurées expérimentalement pour le CHO, ce qui laisse présager des propriétés de compression similaires. Elles sont également en bon accord avec les données du polystyrène.

Les isothermes obtenues en compression pour le CH et le CHO sont présentées sur la figure (4.10). Les fonctions de distributions radiales associées à quelques états pression-densité sur les isothermes à 300 K sont détaillées sur la figure (4.11). On remarque que les deux courbes froides sont identiques pour des densités inférieures à $5 \times \rho_0$. À plus haute densité, l'isotherme du CH devient plus compressible que celle du CHO. On observe une différence en pression de 90 GPa ($\approx 3,5\%$) à $8 \times \rho_0$, et de 180 GPa ($\approx 4\%$) à $10 \times \rho_0$. Les isothermes (figure 4.10) des deux amorphes diffèrent lorsque les structures atomiques (figure 4.11) commencent à se dissocier. En particulier, la dissociation des atomes de carbone de ceux d'hydrogène est marquée autour de $5 \times \rho_0$. Les premiers pics des fonctions de distribution radiale des atomes C–H, qui sont toujours présents à $3 \times \rho_0$ et $4 \times \rho_0$, ont disparu à $6 \times \rho_0$ et $7 \times \rho_0$. Cette

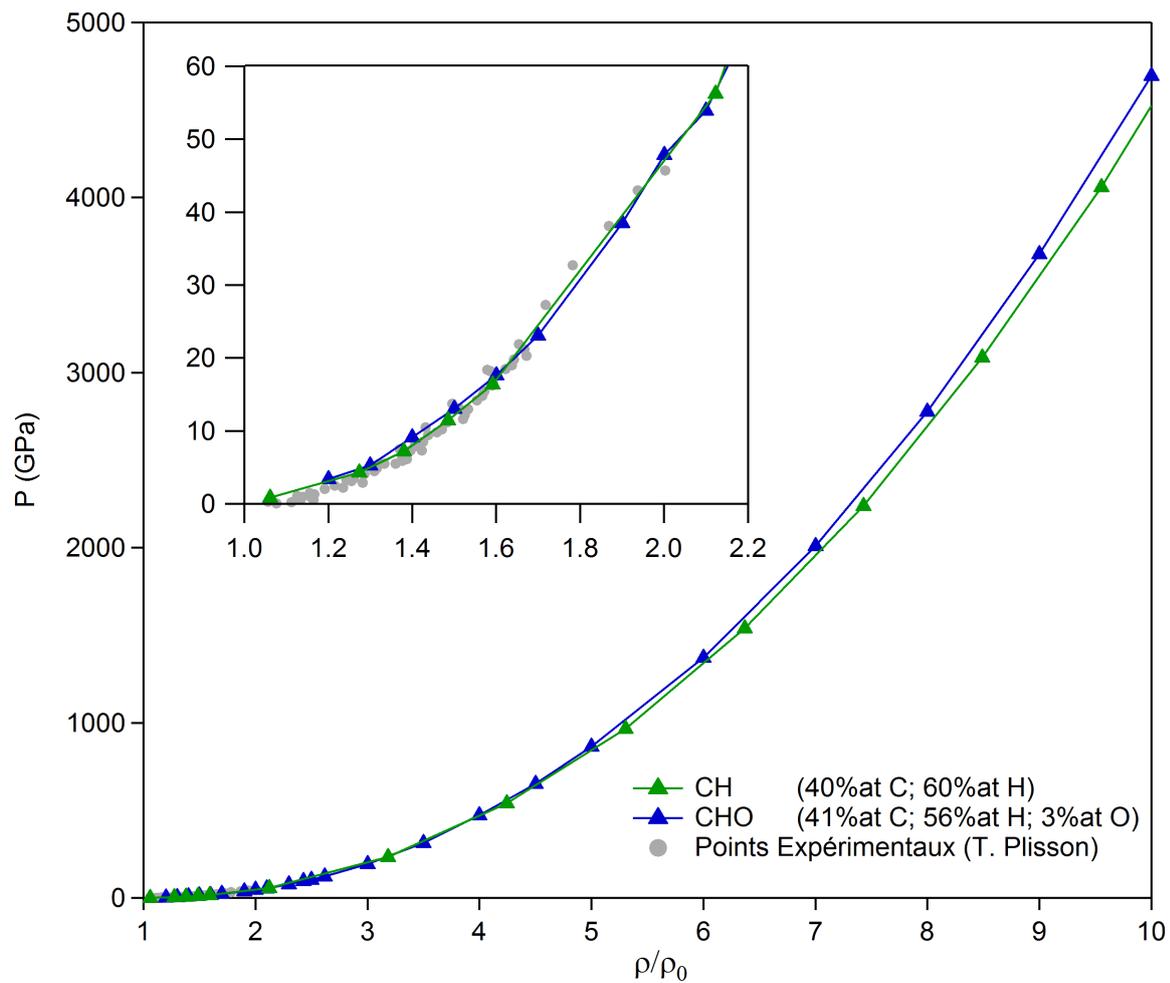


FIGURE 4.10 : Isothermes à 300 K calculées par la QMD pour deux compositions chimiques utilisées dans cette section.

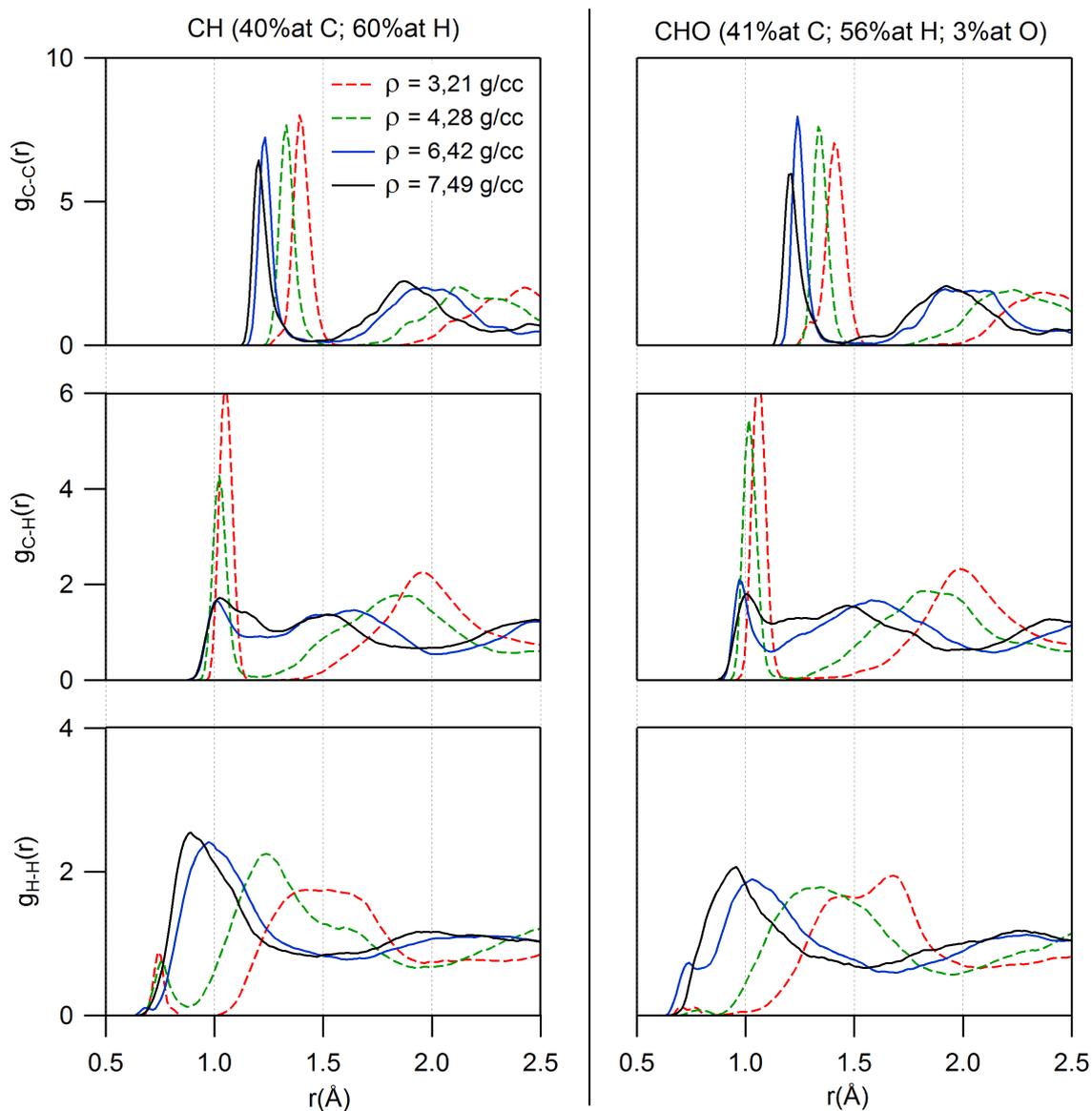


FIGURE 4.11 : Fonctions de distributions radiales des systèmes CH et CHO à différentes densités sur les isothermes à 300 K calculées par la dynamique moléculaire quantique.

caractéristique se retrouve de la même façon sur le CH et le CHO. Par conséquent, les écarts visibles sur les isothermes à 300 K apparaissent lorsque la dissociation des liaisons C–H se produit. La présence d'oxygène n'affecte pas les propriétés de compression de l'ablateur plastique pour des densités inférieures à $5 \times \rho_0$.

Conclusions :

L'objectif de cette partie était de regarder l'effet de l'oxygène sur l'isotherme à 300 K de l'ablateur CHO. Nous avons calculé une isotherme pour un système de composition chimique $\text{CH}_{1,50}$, sans oxygène. La même méthode de calcul que celle mise au point pour l'ablateur CHO (dans la partie 4.3.1) a été utilisée. Une comparaison avec l'isotherme du CHO a montré que la présence d'oxygène n'affecte pas les propriétés de compression de l'ablateur pour des densités inférieures à $5 \times \rho_0$. Des écarts en pression se produisent à plus haute compression. L'analyse des fonctions de distribution radiale des deux systèmes a ensuite révélée que les écarts sur la courbe froide apparaissent lorsque la dissociation des liaisons C–H se produit.

4.4 L'Hugoniot principale de l'ablateur CHO

Nous allons maintenant étendre l'exploration du diagramme de phase en augmentant la température du système. En particulier, nous nous intéresserons à l'Hugoniot principale du CHO étant donné que c'est la seule partie du diagramme de phase qui nous est accessible expérimentalement. L'Hugoniot représente l'ensemble des états atteints lors d'une compression par choc (plus de détails seront donnés dans le chapitre suivant). Nous nous concentrerons dans le régime de densités et de températures mesurées lors d'expériences de chocs laser et correspondant aux premières phases de l'implosion d'une capsule de FCI. Ces mesures seront présentées dans les chapitres suivants. Le régime étudié est défini par des densités comprises entre $2,2 \times \rho_0$ et $3,2 \times \rho_0$, et des températures comprises entre 3000 K et 70000 K.

De précédentes études de dynamique moléculaire quantique ont été réalisées sur les matériaux plastiques. Celles-ci ont fourni des données d'équation d'état le long d'isochores [113, 74], ainsi que sur l'Hugoniot principale [70, 69, 73] et sur une région étendue du diagramme de phase (ρ, T) [71, 114]. Nous pouvons notamment citer les travaux de Hu *et al.* [69]. Ils ont permis le calcul de l'Hugoniot principale, ainsi que des propriétés optiques du polystyrène (C_8H_8) sous choc pour des températures entre 2000 K et 400000 K. Les courbes d'Hugoniot ont alors été obtenues à partir d'un maillage densité-température de la pression et de l'énergie interne. Cependant, ces calculs considèrent un plastique idéal

équimolaire. De plus, la région du diagramme de phase qui nous intéresse y est sous échantillonnée. Mattsson *et al.* [73] se sont également intéressés aux propriétés de compression des matériaux plastiques. Ils ont montré l'effet de la dissociation chimique sur l'Hugoniot principale du polyéthylène (CH₂). Les courbes d'Hugoniot ont été générées à l'aide de la dynamique moléculaire quantique, mais sont limitées à une pression de 350 GPa.

Les calculs que nous présentons ici cherchent à être le plus proche possible des matériaux ablateurs des capsules de FCI. De plus, nous chercherons à décrire la dissociation sur une gamme de pression comprise entre 1 et 8 Mbar.

4.4.1 Méthode de calcul

Numériquement, on obtient les courbes d'Hugoniot à partir d'un maillage en densité-température de la pression $P(\rho, T)$ et l'énergie interne $E(\rho, T)$ du système à l'équilibre. La détermination des états sur l'Hugoniot se fait en deux temps. Tout d'abord, on calcule pour chaque densité la dépendance en température de la pression $P_\rho(T)$ et de l'énergie interne $E_\rho(T)$ le long d'une isochore. Ensuite, on regarde la conservation de l'énergie $H[P, E]$ le long de l'Hugoniot. Les états sur l'Hugoniot correspondent à la température pour laquelle cette fonction s'annule. Ainsi, pour une valeur constante de la densité ρ_1 , on calcule la température T_1 telle que : $H[P_{\rho_1}(T_1), E_{\rho_1}(T_1)] = 0$, avec :

$$H[P_{\rho_1}(T), E_{\rho_1}(T)] = E_{\rho_1}(T) - E_0 + \frac{1}{2} \left(\frac{1}{\rho_1} - \frac{1}{\rho_0} \right) (P_{\rho_1}(T) + P_0). \quad (4.7)$$

Cette formule sera démontrée dans le chapitre suivant. Une fois les valeurs de ρ_1 et T_1 connues sur l'Hugoniot, on détermine la pression P_1 et l'énergie interne E_1 correspondantes sur les isochores : $P_1 = P_{\rho_1}(T_1)$, et $E_1 = E_{\rho_1}(T_1)$.

Les vitesses de choc U_s et les vitesses fluides u_p sont ensuite déduites des formules :

$$U_s = \sqrt{\frac{\rho_1(P_1 - P_0)}{\rho_0(\rho_1 - \rho_0)}}; u_p = U_s \left(1 - \frac{\rho_0}{\rho_1} \right). \quad (4.8)$$

Ces relations dépendent des valeurs initiales de la pression $P_0 = P(\rho_0, T_0)$ et de l'énergie interne $E_0 = E(\rho_0, T_0)$, à la densité ρ_0 , et à la température T_0 . Pour des conditions standard de densité et de température, T_0 est la température ambiante (300 K), et ρ_0 est la densité solide, mesurée expérimentalement pour les deux matériaux d'étude (tableau 4.1). Dans ces conditions, la pression initiale est fixée à 1 bar, et l'énergie interne est déterminée par une simulation de dynamique moléculaire quantique supplémentaire.

Calcul du pôle : Pour calculer l'énergie interne $E_0 = E(\rho_0, T_0)$, on doit modéliser les liaisons interatomiques des matériaux dans l'état solide. Nous avons montré lors des calculs sur l'isotherme à 300 K,

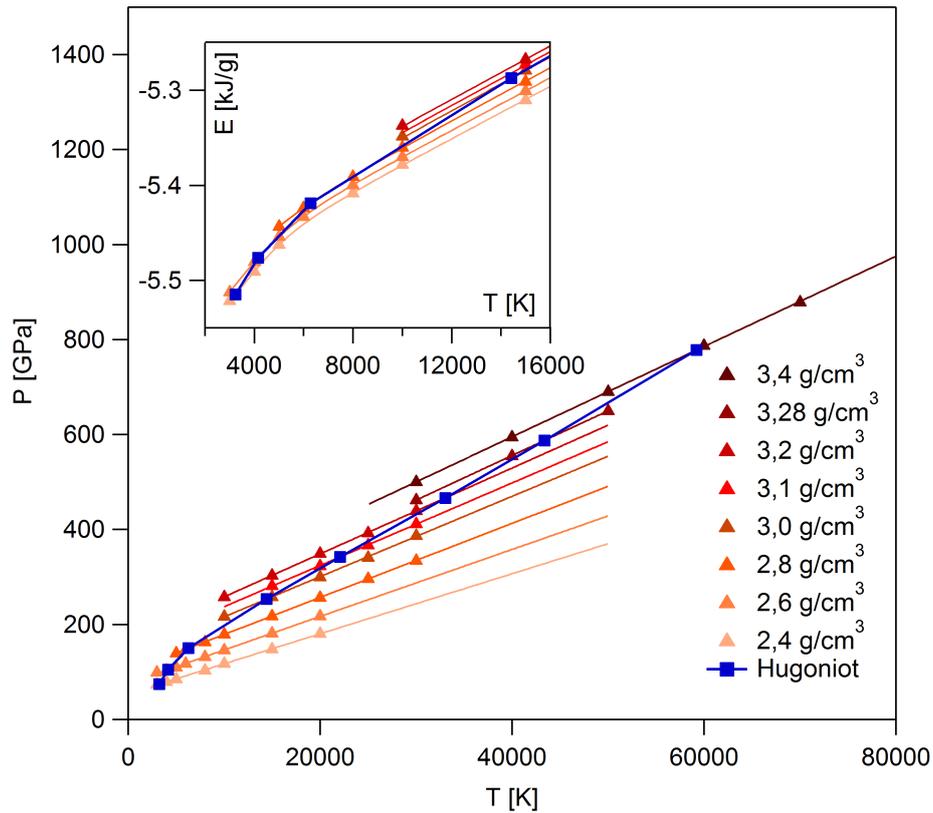


FIGURE 4.12 : *Dépendance en température de l'énergie interne et de la pression le long des isochores du CHO, calculée à partir de simulations de dynamique moléculaire quantique.*

que l'ablateur CHO présente des liaisons carbone-carbone simples et doubles. Les calculs effectués en détente sur l'isotherme, à partir d'une configuration atomique d'équilibre à $2 \times \rho_0$, restituent les mesures expérimentales, et présentent ce type de liaisons. On utilise donc la valeur de l'énergie interne calculée à la densité solide du CHO, grâce à cette méthode. Elle est de $E_0 = -794,44$ Ha.

Calcul des isochores $E_\rho(T)$, et $P_\rho(T)$: Les isochores sont ensuite calculées par des simulations de dynamique moléculaire quantique dans l'ensemble isocinétique. On utilise des configurations prises sur la courbe froide pour initialiser les calculs. Les données de sortie du code ABINIT sont les fluctuations de la pression $P_{\rho,T}(t)$ et l'énergie libre totale $F_{\rho,T}(t)$ à chaque pas de temps. Les simulations s'étendent sur 2 ps environ. On moyenne ces deux grandeurs sur les dernières 500 fs à l'équilibre. Un calcul statique de DFT sur la dernière configuration atomique nous fournit ensuite la valeur de l'entropie du système. L'énergie interne est déduite des calculs de l'énergie libre et de l'entropie, par la relation : $E = F + k_B T S$.

La figure (4.12) présente les isochores de l'énergie $E_\rho(T)$ et de la pression $P_\rho(T)$ de l'ablateur CHO. Chaque point sur les courbes représente un calcul de dynamique moléculaire de deux semaines environ sur 256 processeurs. La pression possède un comportement linéaire par rapport à la température,

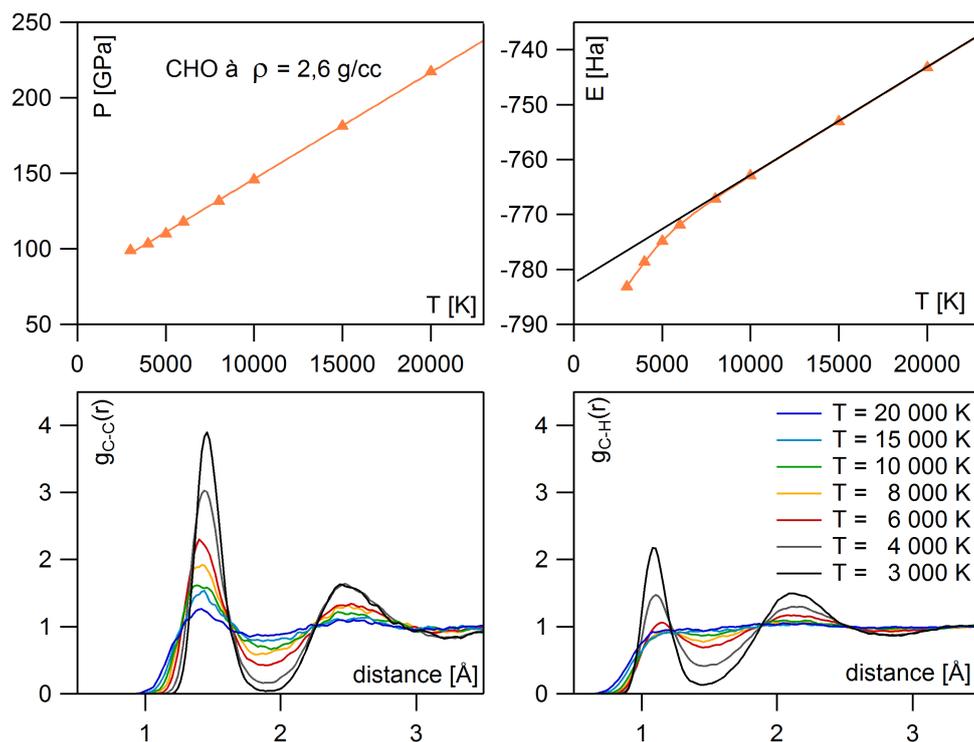


FIGURE 4.13 : Fonctions de distributions radiales entre les atomes de carbone et d'hydrogène (en bas) sur les isochores du CHO à $2,6 \text{ g/cm}^3$ (en haut).

jusqu'à 70000 K. Deux régimes distincts sont visibles sur les isochores de l'énergie interne. Pour des températures entre 3000 K et 8000 K environ, l'énergie interne varie fortement puis plus doucement et de manière linéaire au-delà. Pour comprendre ces variations de l'énergie interne, nous allons regarder l'évolution des propriétés structurales du système lorsque l'on augmente la température le long des isochores.

Propriétés structurales le long des isochores : Les fonctions de distributions radiales entre les atomes carbone-carbone C–C et carbone-hydrogène C–H le long de l'isochore à $2,6 \text{ g/cm}^3$ sont détaillées sur la figure (4.13). À basse température, le système est structuré localement. Un premier pic est visible, suivi d'un deuxième moins marqué. Des molécules sont alors présentes dans la boîte de simulation. Lorsque l'on augmente la température, les deux pics s'estompent sous l'effet de la température, puis disparaissent. Les molécules se dissocient. À partir d'une température de 4000 K environ, le pic principal sur la fonction de distribution des atomes C–H disparaît, tandis que celui des atomes C–C demeure présent. À partir d'une température de 10000 K environ, aucun pic n'est visible sur les fonctions de distribution des atomes C–C. Le système est alors entièrement dissocié. Ce même compor-

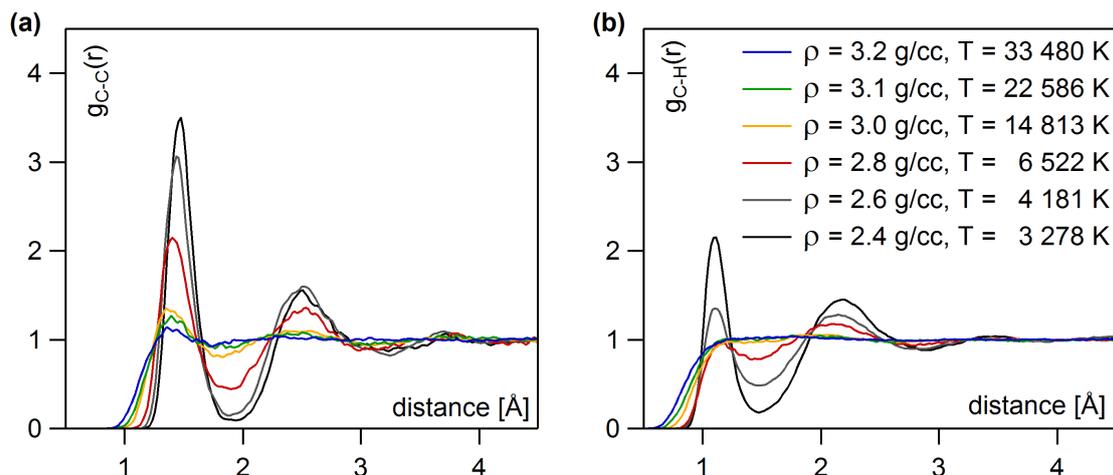


FIGURE 4.14 : Fonctions distributions radiales entre les atomes carbone-carbone $g_{C-C}(r)$ (a) et carbone-hydrogène $g_{C-H}(r)$ (b) sur l'Hugoniot principale de l'ablateur CHO.

tement s'observe sur toutes les isochores. De cette façon, nous pouvons associer l'évolution linéaire de l'énergie interne par rapport à la température à un état de liquide simple dans lequel la structure solide a complètement disparu.

Conclusions :

Nous avons obtenu les courbes d'Hugoniot de l'ablateur CHO, à partir de calculs de dynamique moléculaire quantique le long d'isochores, entre 2,4 et 3,4 g/cm³. L'analyse des fonctions de distributions radiales entre les atomes de carbone-carbone et carbone-hydrogène a montré l'effet de la dissociation chimique due à la température sur les pressions et les énergies internes.

4.4.2 Comparaison avec l'équation d'état tabulée

Sur la figure (4.15), les courbes d'Hugoniot de la pression et de la température en fonction de la compression (ρ/ρ_0) issues de la dynamique moléculaire quantique sont comparées aux Hugoniot extraites de l'équation d'état tabulée du CHO. On remarque des différences marquées entre ces courbes. Pour une compression donnée, la pression et la température issues des calculs *ab initio* sont inférieures au modèle QEOS. Les écarts vont jusqu'à 100 GPa en pression, et 10000 K en température.

Les fonctions de distribution radiale entre les atomes de carbone-carbone et de carbone-hydrogène des points sur l'Hugoniot sont présentées sur la figure (4.14). La dissociation chimique, qui a été observée sur les isochores du fait de la température, se retrouve sur les courbes d'Hugoniot. Dans ce cas, ce phénomène se produit en raison de l'effet combiné de la température et de la densité. La dissocia-

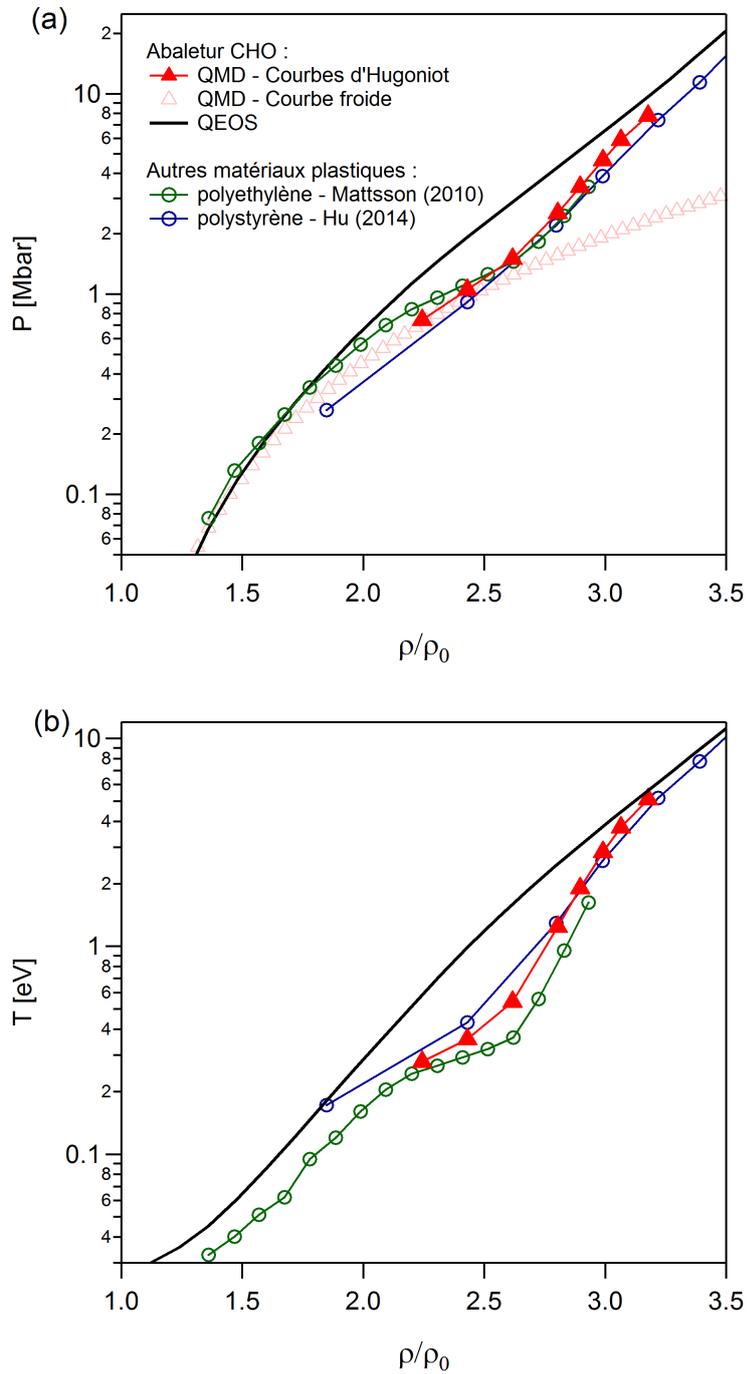


FIGURE 4.15 : Courbes d'Hugoniot de l'ablateur CHO dans le plan pression-compression (a), et le plan température-compression (b). Les simulations de dynamique moléculaire quantique (triangles rouges) sont comparées au modèle d'équation d'état semi-empirique QEOS en noire. Les courbes d'Hugoniot issues de calculs de QMD effectués sur d'autres matériaux plastiques ont été ajoutées : pour le polyéthylène [73] (courbes vertes), ainsi que pour le polystyrène [69] (courbes bleues).

tion le long de l'Hugoniot se met en place graduellement à partir de $\approx 2,6 \text{ g/cm}^3$ et est complète à $\approx 3,2 \text{ g/cm}^3$. Les pressions sur l'Hugoniot aux faibles densités (où de façon similaire aux faibles compressions) sont alors proches de l'isotherme à 300 K pour laquelle seule la densité a un effet sur la structure. Une fois le système complètement dissocié, la pression et la température augmentent rapidement, et rejoignent les valeurs calculées par le modèle QEOS. Les différences que l'on observe entre l'équation d'état tabulée et les simulations de QMD sont donc dues à l'absence de modèle de dissociation dans le modèle QEOS.

Notons que les courbes d'Hugoniot du polystyrène et du polyéthylène obtenues à partir des calculs de dynamique moléculaire quantique de S. X. Hu [69] et T. R. Mattsson [73] ont le même comportement que l'ablateur CHO. Elles se recouvrent en compression. S. X. Hu s'est intéressé à des états très comprimés du polystyrène, jusqu'à 62 Mbar sur l'Hugoniot. Le nombre de points sur l'Hugoniot est insuffisant pour décrire précisément la dissociation chimique. Il se contente de mentionner un « changement de structure ». T. Mattsson a étudié l'effet de la dissociation sur les états comprimés du polyéthylène. Il a montré que les liaisons carbone-carbone se dissocient sur l'Hugoniot à partir d'une compression de $\rho/\rho_0 = 2,1$, jusqu'à $\rho/\rho_0 = 2,6$, et pour des températures comprises entre $\approx 1000 \text{ K}$ et $\approx 4000 \text{ K}$, ce qui limite la pression à 350 GPa.

Conclusions :

Nous avons montré l'effet de la dissociation chimique sur l'Hugoniot de l'ablateur CHO. Ce phénomène physique n'est pas pris en compte dans nos équations d'état tabulées. Pour une compression donnée, la pression et la température sont surestimées par le modèle QEOS. Les écarts vont jusqu'à 100 GPa en pression et 10000 K en température.

Une amélioration de l'équation d'état tabulée du CHO passe donc par l'introduction d'un modèle de dissociation, en complément du modèle d'atome moyen. Sans vouloir changer la modélisation théorique, nous modifierons le coefficient de Grüneisen, pour restituer la dissociation chimique sur l'Hugoniot.

4.4.3 Modification de la contribution ionique dans le modèle QEOS

Dans le chapitre 2, nous avons décrits les modèles utilisés pour le calcul de la contribution ionique dans les équations d'état QEOS. En particulier, nous avons mis en évidence le rôle important du coefficient de Grüneisen. Ce dernier permet de fixer la température de Debye Θ_D ainsi que la température de fusion T_{fusion} , et agit sur le calcul des propriétés ioniques dans la phase solide ainsi que dans la phase fluide.

Nous commencerons par vérifier l'hypothèse quasi-harmonique à partir de laquelle le modèle de Debye définit le coefficient de Grüneisen. Ensuite, nous donnerons une forme analytique à ce coefficient de façon à restituer les calculs le long de l'Hugoniot de l'ablateur CHO.

L'hypothèse quasi-harmonique dans le modèle de Debye : Rappelons que le modèle du solide de Debye introduit une définition microscopique du coefficient de Grüneisen qui s'exprime suivant :

$$\gamma_s(\rho) = \frac{d \log \Theta_D(\rho)}{d \log \rho}. \quad (4.9)$$

Ce modèle se base alors sur l'hypothèse quasi-harmonique qui suppose que les modes de fréquence sont indépendants de la température et ne dépendent ainsi que du volume⁷ V , ou de façon équivalente de la densité massique, $\rho = 1/V$. Une conséquence de cette hypothèse est la dépendance unique du coefficient de Grüneisen par rapport à la densité massique.

En réalité, il existe différentes façons de définir et de calculer le coefficient de Grüneisen, soit par une description microscopique, soit par une description macroscopique de la matière. Sous l'hypothèse quasi-harmonique, on peut alors montrer que ces deux descriptions sont équivalentes [46].

Nous allons vérifier la validité de cette hypothèse à partir de nos simulations de dynamique moléculaire quantique. On utilise alors la définition du coefficient de Grüneisen thermodynamique $\gamma_{th}(\rho, T)$, qui se base sur une description macroscopique de la matière :

$$\gamma_{th}(\rho, T) = \frac{1}{\rho} \frac{\frac{dP_\rho(T)}{dT}}{\frac{dE_\rho(T)}{dT}}. \quad (4.10)$$

Celle-ci fait intervenir les isochores $P_\rho(T)$ et $E_\rho(T)$, lesquelles sont maillées par nos points de dynamique moléculaire quantique. Notons que le calcul des dérivées nécessite l'utilisation de formes analytiques pour les isochores. Nous avons ainsi ajusté des équations paramétriques sur nos points QMD. Une fonction affine a été utilisée pour décrire l'évolution en température de la pression. La fonction (4.11) a ensuite été introduite pour restituer les variations de l'énergie interne aux basses températures.

$$E_\rho(T) = \frac{a}{e^{\frac{b}{T}-cT} + 1} + dT + \varphi_0 \quad (4.11)$$

a , b , c , d , et φ_0 sont des paramètres ajustés sur nos simulations.

L'hypothèse quasi-harmonique sera vérifiée si, pour une densité donnée, le coefficient de Grüneisen thermodynamique est constant par rapport à la température. L'évolution de ce coefficient en fonction de la température pour chacune des isochores calculées est présentée sur la figure (4.16). On remarque

7. Notons que la dépendance de la fréquence avec le volume s'explique par le fait que comprimer un solide le rend plus dur, augmentant les forces intérieures et donc les fréquences de vibrations.

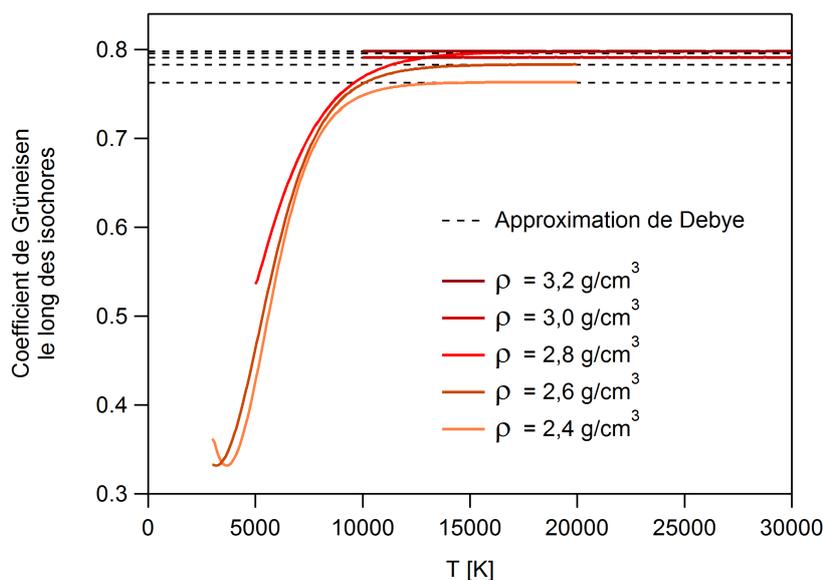


FIGURE 4.16 : Calcul du coefficient de Grüneisen le long des isochores du CHO, calculées par la dynamique moléculaire quantique, pour des densités fixes entre 2,4 et 3,2 g/cm³. Ce coefficient est uniquement constant pour des températures supérieures à 10000 K. L'hypothèse quasi-harmonique n'est donc pas valable en dessous de cette valeur.

qu'il n'est pas constant et varie fortement pour des températures inférieures à 10000 K. L'hypothèse quasi-harmonique n'est alors pas vérifiée. La dissociation chimique a ainsi un effet sur le coefficient de Grüneisen thermodynamique. Nous modifierons donc ses valeurs afin d'introduire ce phénomène dans les équations d'état tabulées des ablateurs⁸.

Le fait de modifier le coefficient de Grüneisen au moyen de simulations dynamique moléculaire quantique n'est pas nouveau. En effet, S. Hamel [71] a ajusté un modèle d'équation d'état de type Mie-Grüneisen sur ses calculs QMD réalisés à haute température (entre 4 000 et 100 000 K). Il a alors supposé que l'hypothèse quasi-harmonique est vérifiée, et que les isochores ont un comportement linéaire en température. Le coefficient de Grüneisen ne dépendant que de la densité, une valeur constante a été déterminée pour chacune des isochores. Cette méthode se base sur des calculs à haute température et néglige l'effet de la dissociation chimique sur l'équation d'état. Nous procéderons différemment. Young et Corey proposèrent également de modifier le coefficient de Grüneisen dans le modèle QEOS à partir de paramètres arbitraires [56]. Dans notre cas, nous allons chercher une forme empirique au

8. Notons que la théorie de Debye ne s'applique qu'aux ions, et néglige les interactions entre les électrons et les phonons. La dynamique moléculaire quantique, quant à elle, s'applique à une ensemble d'atomes et d'électrons. Les résultats observés nous indiquent ainsi que toutes les approximations introduites dans les équations d'état tabulées ne permettent pas de restituer les contributions thermiques à basse température. Le calcul séparé des ions et des électrons, dans le cadre de l'atome moyen, n'est pas valide dès lors que les atomes ne sont pas complètement dissociés.

coefficient de Grüneisen en fonction de la densité qui restitue artificiellement la dissociation sur les courbes d'Hugoniot. Cela nous permettra d'avoir une forme utilisable dans une table d'équation d'état.

Forme empirique du coefficient de Grüneisen : Nous commençons par déduire des valeurs du coefficient de Grüneisen à partir des états pression-densité sur l'Hugoniot et sur l'isotherme à 300 K issus de nos calculs QMD. Nous donnerons ensuite une forme analytique à ce coefficient, ce qui permettra une utilisation dans le modèle QEOS.

On utilise une forme d'équation d'état de type Mie-Grüneisen afin d'exprimer le coefficient de Grüneisen sous la forme :

$$\gamma(\rho) = \frac{1}{\rho} \frac{P_H(\rho) - P_{c.f.}(\rho)}{E_H(\rho) - E_{c.f.}(\rho)} \quad (4.12)$$

où, $[P_H(\rho), E_H(\rho)]$ et $[P_{c.f.}(\rho), E_{c.f.}(\rho)]$ sont les pressions et les énergies calculées par la dynamique moléculaire quantique sur l'Hugoniot et sur l'isotherme à température ambiante, pour une densité fixe ρ .

On exprime ensuite les énergies à partir des valeurs connues des pressions et des relations⁹ :

$$E_H(\rho) - E_0 = \frac{1}{2} [P_H(\rho) + P_0] \left[\frac{1}{\rho} - \frac{1}{\rho_0} \right], \quad (4.13)$$

$$E_{c.f.}(\rho) - E_0 = - \int_{\rho_0}^{\rho} P_{c.f.}(\rho') / \rho'^2 d\rho'. \quad (4.14)$$

avec, $P_0 = 1$ bar, ρ_0 la densité standard, et E_0 l'énergie du pôle qui n'intervient pas dans la relation (4.12).

La figure (4.17) présente le coefficient de Grüneisen issu de la dynamique moléculaire quantique (triangles rouges), et du modèle de Cowan (courbe verte). Ce dernier possède une valeur importante à la densité solide, $\gamma(\rho_0) = 1,29$, puis décroît lorsque l'on augmente la densité. Dans le cas de nos simulations, les valeurs calculées sont inférieures au modèle de Cowan et le comportement très différent. Le coefficient de Grüneisen est de $\approx 0,1$ pour des densités proches de $2,4 \text{ g/cm}^3$. Il augmente ensuite lorsque l'on accroît la densité, et se stabilise autour de $0,8$ à $3,2 \text{ g/cm}^3$.

Étant donné cette transition entre une valeur minimum et maximum, on utilise une fonction de Hill pour modéliser le coefficient de Grüneisen issu des simulations numériques. Cette fonction s'écrit comme :

$$\gamma_{\text{eff}}(\rho) = x_{\min} + \frac{x_{\max} - x_{\min}}{1 + \left(\frac{x_1}{\rho}\right)^a}, \quad (4.15)$$

où, x_{\min} , x_{\max} , x_1 , et a sont des paramètres ajustables. On fait ensuite varier ces paramètres de façon à ce que la pression totale sur l'Hugoniot dans le modèle QEOS restitue les prédictions numériques.

9. L'équation (4.13) est la relation d'Hugoniot qui traduit la conservation de l'énergie. L'équation (4.14) correspond à la définition de la contribution froide de l'équation d'état.

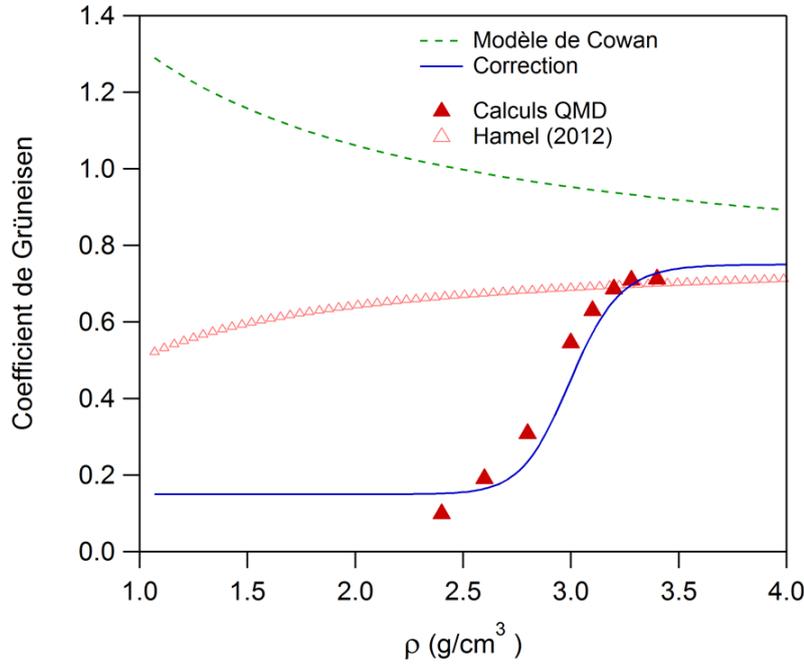


FIGURE 4.17 : Valeurs du coefficient de Grüneisen de l'ablateur CHO calculées par le modèle de Cowan (courbe en pointillée vert), et par la dynamique moléculaire quantique (triangles rouges). Le coefficient de Grüneisen effectif, qui a été déterminé à partir d'une fonction de Hill pour restituer les états sur l'Hugoniot du CHO, est indiqué en bleu.

On détermine ainsi une forme optimale du coefficient de Grüneisen effectif (4.15). Afin de conserver la cohérence thermodynamique dans le modèle QEOS, on calcule la températures de Debye¹⁰ et la température de fusion¹¹ à partir du coefficient de Grüneisen effectif. Dans notre modèle, ces deux températures caractéristiques sont définies par :

$$\Theta_D(\rho) = \Theta_{D,0} \left(\frac{\rho}{\rho_0} \right)^{x_{\min}} \left(\frac{\rho^a - x_1^a}{\rho_0^a - x_1^a} \right)^{(x_{\max} - x_{\min})/a}, \quad (4.17)$$

$$T_{\text{fusion}}(\rho) = T_{\text{fusion},0} \left(\frac{\rho}{\rho_0} \right)^{2x_{\min} - 2/3} \left(\frac{\rho^a - x_1^a}{\rho_0^a - x_1^a} \right)^{2(x_{\max} - x_{\min})/a}. \quad (4.18)$$

Les paramètres qui restituent le mieux les simulations sur l'Hugoniot de l'ablateur CHO dans les plans pression-densité et température-densité sont : $x_{\min} = 0,15$, $x_{\max} = 0,75$, $x_1 = 3$, et $a = 26$, avec $\Theta_{D,0} = 0,08617$ eV et $T_{\text{fusion},0} = 0,43$ eV.

10. La température de Debye s'obtient à partir de la définition du coefficient de Grüneisen (4.9).

11. La température de fusion $T_{\text{fusion}}(\rho)$ s'obtient à partir du coefficient de Grüneisen $\gamma_{\text{solide}}(\rho)$ selon la loi de Gilvary [115], qui est une traduction de la loi de Lindemann (2.30) :

$$\frac{d \log T_{\text{fusion}}(\rho)}{d \log \rho} = 2 \left[\gamma_{\text{solide}}(\rho) - \frac{1}{3} \right]. \quad (4.16)$$

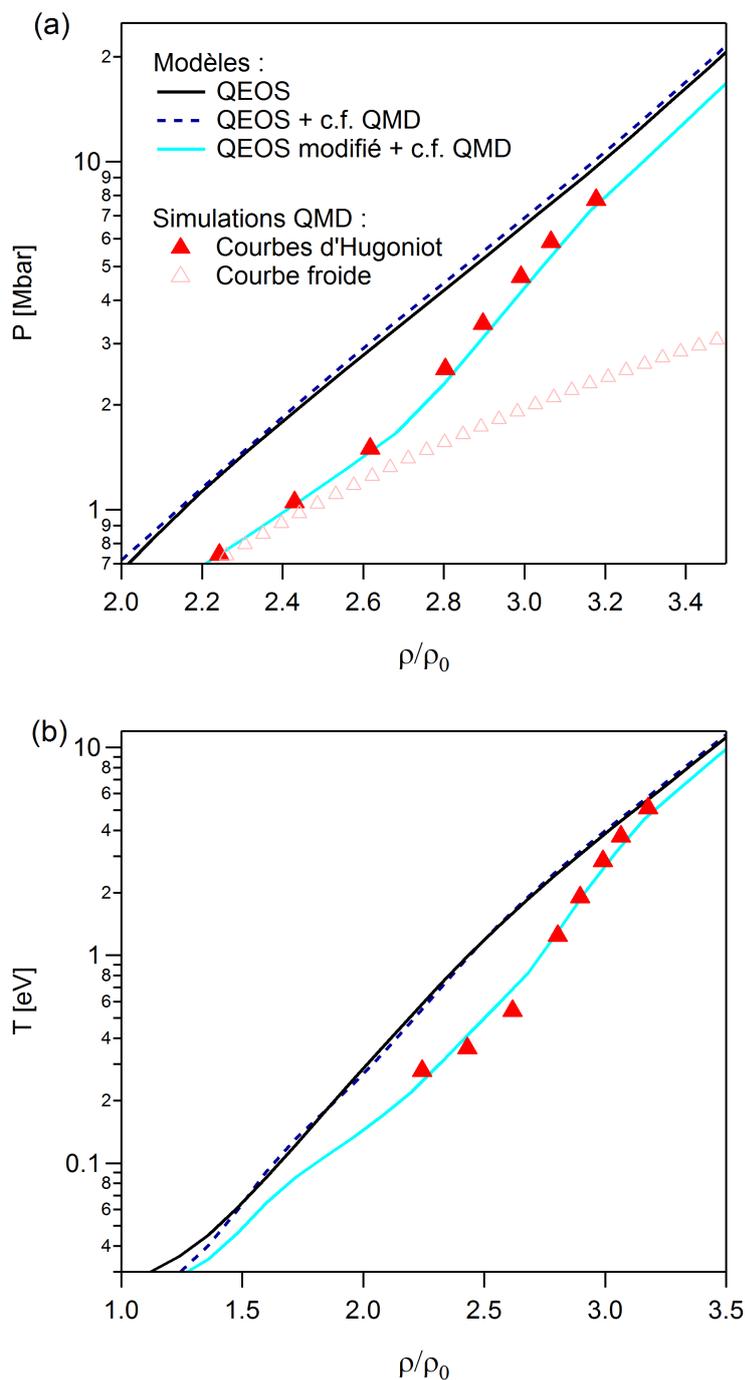


FIGURE 4.18 : Courbes d'Hugoniot de l'ablateur CHO dans le plan pression-compression (a), et le plan température-compression (b). La courbe noire correspond au modèle semi-empirique QEOS sans modification. Les courbes bleues correspondent aux deux modifications apportées à QEOS : en pointillé bleu foncé, l'isotherme à 300 K calculée par QMD a été ajoutée, en bleu clair, l'isotherme à 300 K et le coefficient de Grüneisen effectif ont été ajoutés. Cette dernière modification restitue les valeurs de la QMD sur l'Hugoniot.

Le coefficient de Grüneisen effectif est indiqué par la courbe bleue sur la figure (4.17). On remarque un écart avec les valeurs déduites des simulations QMD à l'aide de la relation (4.12). Ces dernières sont représentées par des triangles rouges sur la figure. Ceci s'explique par le fait que le coefficient de Grüneisen agit, dans le modèle QEOS, uniquement sur la contribution thermique des ions. Ainsi, contrairement aux précédents calculs qui considéraient l'ensemble composé des ions et des électrons, l'ajustement proposé ici ne s'applique qu'aux ions.

Les courbes d'Hugoniot obtenues à partir des modifications apportées au modèle QEOS sont présentées sur la figure (4.18).

Conclusions :

Nous avons modifié l'équation d'état tabulée de l'ablateur CHO pour restituer l'effet de la dissociation chimique sur l'Hugoniot. Pour cela, nous avons donné une forme effective au coefficient de Grüneisen, ce qui a permis d'agir sur la contribution ionique de l'EOS.

Nous nous sommes concentrés sur une région restreinte du diagramme de phase, pour des densités comprises entre $2,4 \text{ g/cm}^3$ et $3,4 \text{ g/cm}^3$. Une perspective intéressante serait d'améliorer les modèles dans les régions limites, c'est-à-dire, pour des densités inférieures à $2,4 \text{ g/cm}^3$, et supérieures à $3,4 \text{ g/cm}^3$.

4.5 Analyse de l'ablateur CHOSi

Nous appliquons maintenant les méthodes de simulation développées sur le CHO à l'ablateur dopé au silicium (CHOSi).

L'isotherme à 300 K : Du fait d'une contrainte liée à la durée d'une thèse et au temps que prennent les calculs de dynamique moléculaire quantique, nous n'avons cependant pas pu générer une isotherme propre à l'ablateur CHOSi. Nous avons néanmoins déduit une isotherme à 300 K à partir des calculs effectués sur le CHO.

Lors du calcul de l'isotherme à 300 K du CHO, nous avons montré que l'ajout d'atome d'oxygène dans la composition chimique de l'ablateur n'impacte pas l'isotherme dans le plan pression-compression (partie 4.3.4). Des différences ont été observées lors de la dissociation qui se produit à température ambiante pour de très fortes compressions (supérieures à $5 \times \rho_0$). L'absence d'oxygène a alors eu pour principal effet de changer la densité standard du système. De la même façon, nous supposons que le silicium agit uniquement sur la densité standard de l'ablateur. On peut argumenter que le silicium possède un numéro atomique et une proportion atomique proche de celle de l'oxygène dans l'ablateur. Dans ce

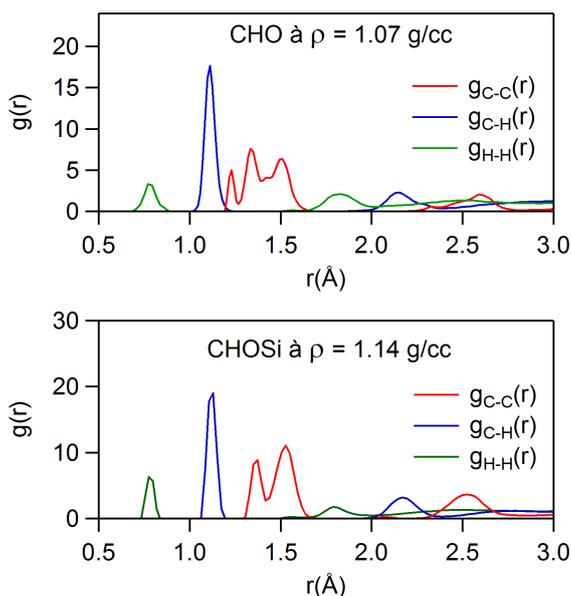


FIGURE 4.19 : Fonctions de distributions radiales des deux pôles simulés dans les conditions normales de densité et de température pour le CHO en haut, et le CHOSi en bas, après une trempe d’une température de 3000 K jusqu’à 300 K.

cas, nous générons l’isotherme à 300 K du CHOSi à partir de l’isotherme du CHO et d’un redimensionnement de la densité, tel que :

$$\rho \mapsto \frac{\rho}{\rho_0^{\text{CHO}}} \rho_0^{\text{CHOSi}}, \quad (4.19)$$

où, $\rho_0^{\text{CHO}} = 1,07 \text{ g/cm}^3$ est la densité standard du CHO, et $\rho_0^{\text{CHOSi}} = 1,14 \text{ g/cm}^3$ la densité standard du CHOSi. On applique cette transformation à la forme analytique AP2 (équation 4.5), qui peut être introduite dans l’équation d’état tabulée.

Courbes d’Hugoniot : On génère ensuite des isochores pour obtenir la courbe d’Hugoniot du CHOSi. On s’intéresse alors aux densités entre 2,6 et 3,2 g/cm^3 , espacées de 0,1 g/cm^3 de façon à avoir suffisamment de points sur l’Hugoniot pour caractériser la dissociation.

Les valeurs du pôle ont été obtenues à partir d’une trempe. Les atomes sont mélangés à 3000 K pendant quelques picosecondes, puis refroidis à 2000 K, puis à 1000 K et à 300 K. Les fonctions de distributions radiales de la structure générée dans les conditions normales de températures et de densités sont présentées sur la figure (4.19). On remarque que l’on n’a pas créé de liaisons carbone-carbone $\text{C}\equiv\text{C}$ triples. Ces liaisons étaient donc probablement des artefacts de calculs liés à la trempe réalisée sur le CHO. Seuls les pics correspondant aux liaisons C–C simples, et C=C doubles sont visibles. On utilise alors la valeur de l’énergie interne à 300 K, que l’on moyenne sur les dernières configurations atomiques à l’équilibre. L’énergie interne dans les conditions normales est de : $E_0 = -836,25 \text{ Ha}$.

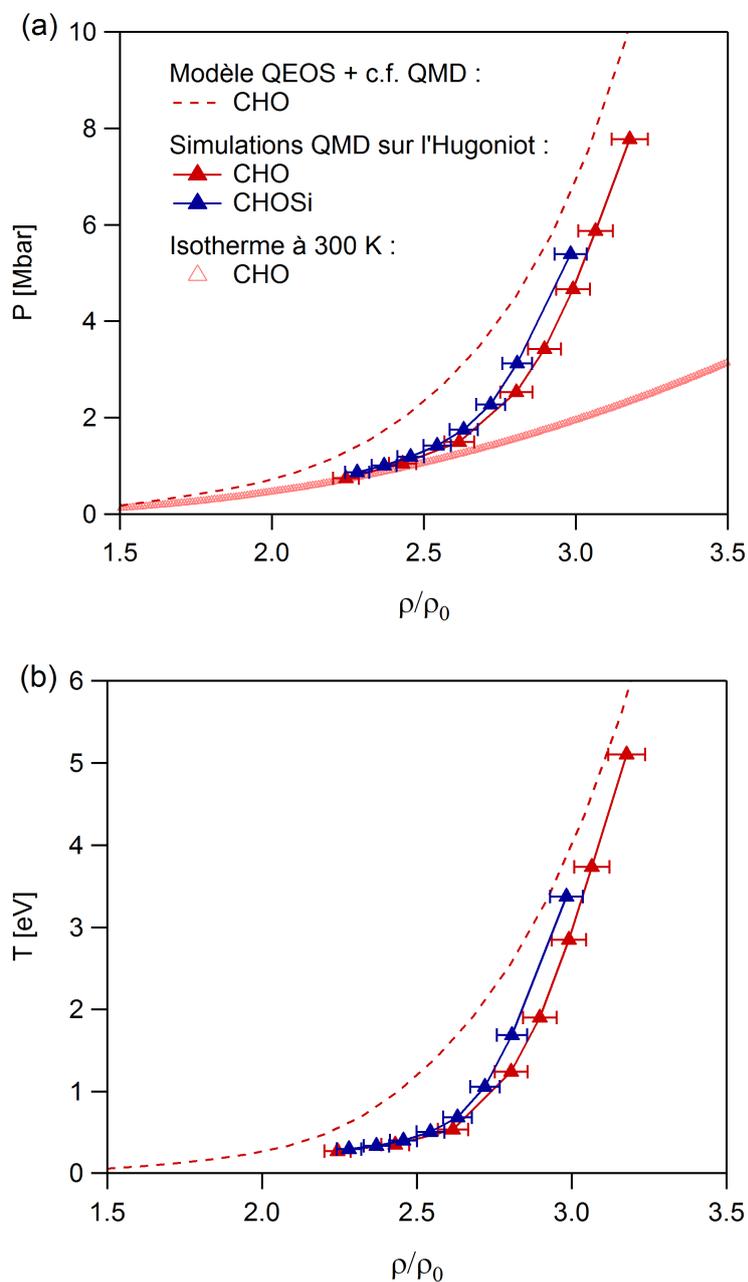


FIGURE 4.20 : Courbes d'Hugoniot des ablateurs CHO et CHOSi dans le plan pression-compression (a), et le plan température-compression (b). Les erreurs sur les points de dynamique moléculaire quantique proviennent de l'incertitude de $0,02 \text{ g/cm}^3$ sur la mesure de la densité standard ρ_0 .

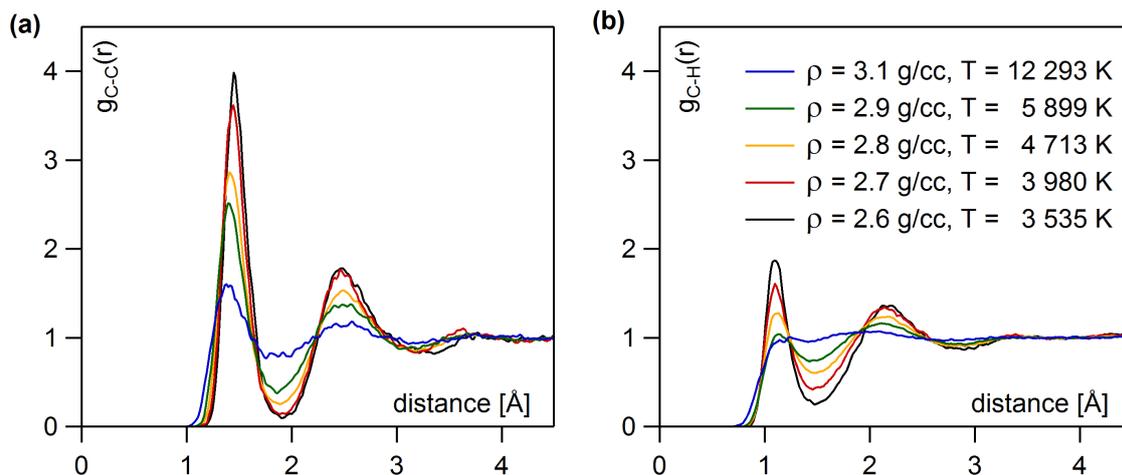


FIGURE 4.21 : Fonctions distributions radiales entre les atomes carbone-carbone $g_{C-C}(r)$ (a) et carbone-hydrogène $g_{C-H}(r)$ (b) sur l'Hugoniot principale de l'ablateur CHOSi.

La figure (4.20) présente la courbe d'Hugoniot obtenue pour le CHOSi et pour le CHO. Les fonctions de distributions radiales entre les atomes de carbone-carbone et de carbone-hydrogène sont indiquées sur la figure (4.21). Les courbes d'Hugoniot dans les plan pression-compression et température-compression ont la même forme. On remarque un plateau en compression pour $\rho/\rho_0 < 2,7$ puis la pression et la température augmentent rapidement. Nous avons vu dans le cas de l'ablateur CHO que ce phénomène est dû à la dissociation chimique. Les fonctions de distribution radiale le long de l'Hugoniot du CHOSi confirment ces conclusions sur la figure (4.21). Les liaisons C–H sont complètement dissociées pour des densités supérieures à $3,1 \text{ g/cm}^3$ (c'est-à-dire $\rho/\rho_0 \approx 2,7$) et des températures supérieures à $12\,000 \text{ K}$. Les liaisons C–C subsistent au-delà de ces valeurs. Notons que les petits écarts entre les courbes d'Hugoniot du CHO et du CHOSi proviennent de l'incertitude sur la densité solide des ablateurs. Par exemple, une incertitude de $\Delta\rho_0 = 0,02 \text{ g/cm}^3$ sur la densité normale mesurée du CHOSi fournit une incertitude de $\Delta(\rho/\rho_0) \approx 0,05$ sur la compression pour $\rho/\rho_0 = 3$.

Par conséquent, le dopant introduit dans l'ablateur n'affecte pas ses propriétés thermodynamiques de ce dernier. Il agit uniquement sur la densité normale. Par exemple, le silicium étant un élément chimique plus lourd que le carbone ou l'oxygène, la densité solide du CHOSi ($\rho_0 = 1,14 \text{ g/cm}^3$) est supérieure à celle du CHO ($\rho_0 = 1,07 \text{ g/cm}^3$). Cette conclusion sur l'effet du silicium est plutôt réconfortante en ce qui concerne la conception des capsules de FCI puisque le rôle de silicium est d'agir sur les propriétés d'absorption du rayonnement de la cavité de conversion et non pas de changer l'équation d'état de l'ablateur.

Conclusions :

Nous avons calculé les courbes d'Hugoniot du CHOSi à partir de calculs de dynamique moléculaire quantique. Nous avons montré un comportement similaire entre les deux ablateurs étudiés. En compression, les courbes se recouvrent. On retrouve l'effet de la dissociation chimique sur l'Hugoniot. Les atomes de silicium ne changent pas les propriétés de compression sous choc de l'ablateur des capsules du Laser Mégajoule. Ils agissent principalement sur la densité normale de l'ablateur.

Sommaire

5.1	Objectifs	100
5.2	Les ondes de choc	101
5.2.1	Définition d'une onde de choc	101
5.2.2	Caractéristiques de la matière comprimée par une onde de choc	102
5.2.3	Propagation d'une onde de choc à l'interface entre deux milieux	107
5.3	La désadaptation d'impédance	109
5.3.1	Principe	110
5.3.2	Calcul de l'isentrope de détente	111
5.4	La création d'une onde de choc avec un laser	120
5.4.1	Absorption et transport de l'énergie laser	120
5.4.2	Expansion du plasma et création du choc	123
5.4.3	Les installations laser LULI2000 et GEKKO XII	123
5.5	Les diagnostics optiques	124
5.5.1	Diagnostic actif : interférométrie VISAR	125
5.5.2	Diagnostic passif : mesure de l'émission propre	138
5.6	Le dimensionnement des cibles	144

5.1 Objectifs

Avant d'aborder la partie expérimentale de ce manuscrit, rappelons les principaux objectifs et résultats obtenus.

Nous cherchons à améliorer les équations d'état tabulées des matériaux ablateurs des capsules du Laser Mégajoule. Ces tables sont utilisées par les codes d'hydrodynamique radiative pour dimensionner les expériences de fusion par confinement inertiel. Elles ont un effet important sur la chronométrie des chocs [22, 9] ainsi que sur la croissance des instabilités hydrodynamiques [23, 24] et constituent donc un paramètre important qui doit être maîtrisé.

Les équations d'état tabulées sont construites de façon à inclure l'ensemble du chemin thermodynamique de la capsule au cours de l'implosion. Du fait de l'étendue du diagramme de phase, différents modèles théoriques sont utilisés et assemblés. Ces modèles décrivent chacun une région spécifique du diagramme de phase. Des interpolations et des corrections semi-empiriques sont ensuite appliquées pour restituer des données numériques ou expérimentales. Dans le cadre de cette étude, nous avons utilisé le modèle QEOS pour construire les équations d'états tabulées des ablateurs. C'est un modèle simple d'utilisation, entièrement analytique et paramétrable.

Nous nous sommes intéressés à un domaine restreint du diagramme de phase qui peut être atteint sur des installations laser de tailles moyennes, comme l'installation LULI2000 à Palaiseau et l'installation GEKKO XII à Osaka au Japon. Ce domaine est défini par des températures de quelques électronvolts et des pressions de quelques mégabars. Il se situe à la frontière des différentes modélisations théoriques utilisées dans les équations d'état tabulées et correspond aux premières étapes de l'implosion d'une capsule.

Jusqu'à maintenant, nous avons utilisé la dynamique moléculaire quantique pour calculer des états thermodynamiques dans le domaine d'étude. Une courbe froide a été calculée puis introduite dans le modèle QEOS. Nous nous sommes ensuite intéressés aux courbes d'Hugoniot car elles constituent la seule partie du diagramme de phase qui nous est accessible expérimentalement. Nous avons ainsi montré les effets de la dissociation chimique sur ces courbes, qui ne sont pas pris en compte dans les modèles d'équation d'état tabulée. Cela nous a conduit à modifier le modèle QEOS pour restituer nos simulations. Nous disposons maintenant d'une équation d'état tabulée pour les matériaux ablateurs plastiques utilisable dans un code hydrodynamique.

Nous allons mesurer expérimentalement les états (P, ρ, T) le long de l'Hugoniot des matériaux plastiques CHO et CHOSi. Ces mesures nous permettront de valider nos précédents résultats théoriques. Nous utiliserons les installations laser LULI2000 et GEKKO XII pour générer des chocs dans les maté-

riaux d'étude dans un schéma d'attaque directe avec des cibles planes. Cette configuration est simple à réaliser et suffisante pour générer des chocs dans le régime voulu.

Dans ce chapitre, nous décrivons les méthodes expérimentales utilisées pour mesurer les équations d'état des matériaux plastiques. Les résultats seront présentés dans le chapitre suivant. Tout d'abord, nous verrons de quelle manière la propagation d'une onde de choc dans un matériau nous permet d'obtenir des points d'équation d'état (section 5.2). Nous détaillerons ensuite la méthode de mesure des états (P, ρ) sur l'Hugoniot (section 5.3). Nous aborderons alors les mécanismes de création des ondes de choc par laser (section 5.4). Enfin, nous présenterons les diagnostics optiques qui nous ont permis de caractériser la matière choquée (section 5.5).

5.2 Les ondes de choc

Nous mesurons des points d'équations d'état sur l'Hugoniot principale des ablateurs en propageant une onde de choc dans ces matériaux.

5.2.1 Définition d'une onde de choc

Une onde de choc correspond à la propagation d'une discontinuité dans les grandeurs thermodynamiques qui caractérisent l'état du système. Cette discontinuité est la conséquence de la non linéarité des équations de propagation des ondes de compression dans ce milieu. Nous allons décrire de manière simplifiée le processus de formation d'une onde de choc à l'aide de la figure (5.1). Une description détaillée de ces phénomènes est disponible dans le livre de Zel'dovich [116], ainsi que dans de nombreux manuscrits de thèses [117, 118].

Nous supposons que la vitesse de propagation d'une perturbation est une fonction croissante de la pression, de la densité et de la température. Cette affirmation se démontre dans le cas d'un gaz parfait. On suppose qu'elle reste valable dans le cas général [116].

La figure (5.1) décrit le processus de formation de l'onde de choc. Tout d'abord, considérons le profil de densité présenté en (a). La densité au point A est supérieure à la densité au point B . Comme la vitesse de propagation d'une perturbation de densité au point A est plus grande qu'au point B , après un instant $t_1 > t_0$, le profil de densité se déforme vers celui présenté en (b). Au bout d'un instant suffisamment long $t_2 > t_1$, et en remarquant que le point A ne peut pas dépasser le point B ¹, le profil de densité tend vers celui de la figure (c). Ce dernier profil est caractérisé par une discontinuité, appelée onde de choc. Le front de choc se déplace à une vitesse appelée vitesse de choc, et engendre des modifications brutales

1. Il y aurait alors plusieurs densités possibles pour un seul et même point.

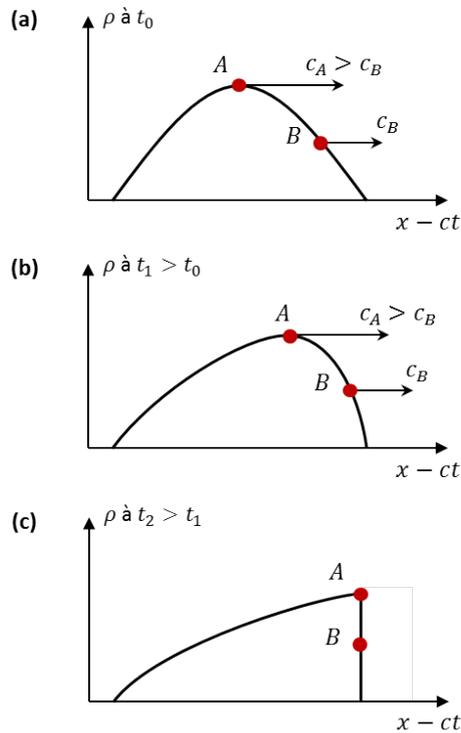


FIGURE 5.1 : Exemple du processus de formation d'une onde de choc : une onde sonore se raidit en raison des effets non linéaires des équations de propagation.

dans les conditions thermodynamiques du milieu qu'il traverse. Notons qu'une condition essentielle à la formation d'une onde de choc implique que la variation de densité soit rapide, de façon à éviter qu'une succession d'états d'équilibre ait le temps de s'établir.

Dans la réalité, le front de choc a une largeur finie et dépend de la forme de la tache focale du faisceau laser. Dans nos expériences, nous utiliserons des taches focales d'un diamètre compris entre $600 \mu\text{m}$ et 1 mm avec des cibles planes de $\approx 4 \text{ mm}$ de largeur, et nous observerons les grandeurs au centre de la tache focale.

5.2.2 Caractéristiques de la matière comprimée par une onde de choc

Nous avons vu que lorsqu'une onde de choc traverse la matière, une discontinuité apparaît dans les grandeurs thermodynamiques du milieu. Les propriétés en amont et en aval de la discontinuité ne sont cependant pas indépendantes. Il est possible de caractériser l'état de la matière choquée, à partir de l'état non choqué et des vitesses mises en jeu. On utilise alors des lois de conservation.

Considérons la situation décrite sur la figure (5.2). Un piston se déplace vers la droite à une vitesse constante U_p et comprime un fluide. En supposant que la vitesse du piston est suffisamment grande, une onde de choc se forme et se propage à une vitesse U_s . En aval de l'onde de choc, le fluide est encore

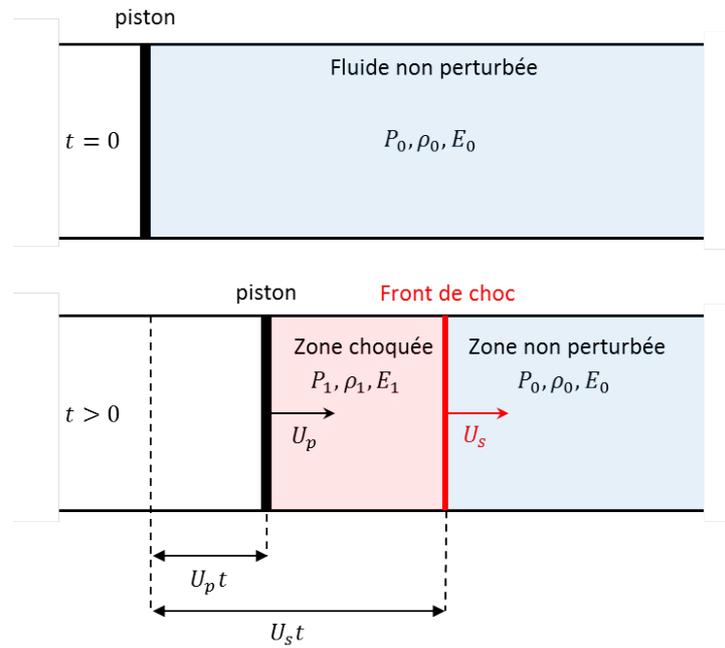


FIGURE 5.2 : Génération d'une onde de choc par le mouvement rapide et fort d'un piston.

dans son état initial, de pression P_0 , de masse volumique ρ_0 et d'énergie interne E_0 . Après le passage de l'onde de choc, le milieu est comprimé et caractérisé par une pression P_1 , une masse volumique ρ_1 et une énergie E_1 . La vitesse du fluide entraîné derrière le front de choc est U_p . Les relations décrivant la discontinuité thermodynamique au passage de l'onde de choc sont obtenues à partir des principes fondamentaux de la mécanique des fluides, à savoir la conservation de la masse, de l'impulsion et de l'énergie.

Conservation de la masse : La masse du fluide mis en mouvement à l'instant t est : $\rho_0 S U_s t$, avec S la section du piston. La masse du fluide comprimé est de : $\rho_1 S (U_s - U_p) t$. À partir de la conservation de la masse, on obtient la relation :

$$\rho_1 (U_s - U_p) = \rho_0 U_s. \quad (5.1)$$

Conservation de l'impulsion : L'impulsion du fluide mis en mouvement à l'instant t est : $(\rho_0 S U_s t) U_p$. L'impulsion due à la force de pression s'écrit comme : $(P_1 - P_0) S t$. De cette façon, la conservation de l'impulsion s'exprime par la relation :

$$P_1 - P_0 = \rho_0 U_s U_p \quad (5.2)$$

Conservation de l'énergie : La loi de conservation de l'énergie totale du système impose que l'énergie reçue par le fluide entre l'instant $t = 0$ et l'instant t soit égale au travail des forces extérieures.

L'énergie reçue par le fluide comprend une augmentation d'énergie interne $(E_1 - E_0)\rho_0 S U_s t$, ainsi que l'énergie cinétique $\frac{1}{2}(\rho_0 S U_s t) U_p^2$. De son côté, le piston a fourni un travail : $P_1 S U_p t$. On obtient ainsi la relation :

$$P_1 U_p = \left(E_1 - E_0 + \frac{1}{2} U_p^2 \right) \rho_0 U_s. \quad (5.3)$$

En utilisant les équations (5.1) et (5.2), on réécrit cette dernière relation sous la forme :

$$E_1 - E_0 = \frac{1}{2} U_p^2 + \frac{P_0 U_p}{\rho_0 U_s}. \quad (5.4)$$

Puis, en sommant les équations (5.3) et (5.4), et en utilisant (5.1), on réécrit la relation de la conservation de l'énergie sous la forme :

$$E_1 - E_0 = \frac{1}{2} (P_1 + P_0) (V_0 - V_1). \quad (5.5)$$

où, $V = 1/\rho$ est le volume spécifique. Cette équation est une relation purement thermodynamique qui ne fait pas intervenir la dynamique du choc (U_p, U_s). C'est la relation utilisée dans le chapitre précédent lors des calculs de dynamique moléculaire quantique.

Nous obtenons ainsi un système de trois équations dynamiques et thermodynamiques qui relient les propriétés du système en amont et en aval du front de choc. Ces relations sont connues sous le nom de relations de Rankine-Hugoniot. Nous allons voir comment relier ces relations à l'équation d'état du matériau choqué.

Courbes d'Hugoniot : Les relations de Rankine-Hugoniot ont été obtenues sans aucune hypothèse concernant l'état thermodynamique du milieu considéré. Or, les trois grandeurs thermodynamiques (P , ρ , et E) sont reliées entre elles par l'équation d'état du milieu qui, d'après sa définition, peut s'écrire comme :

$$f(P, \rho, E) = 0. \quad (5.6)$$

Si l'équation d'état est connue, on dispose alors de quatre équations pour déterminer les cinq grandeurs ($P_1, \rho_1, E_1, U_s, U_p$), qui caractérisent la matière comprimée par une onde de choc. Dans ce cas, nous pouvons exprimer chacune de ces grandeurs en fonction d'une seule. Par exemple, on peut relier la pression au volume spécifique avant et après le choc. Cette relation est une courbe dans le plan (P, V), appelée courbe d'Hugoniot ou polaire de choc :

$$P_1 = P_H(V_1; P_0, V_0). \quad (5.7)$$

C'est une fonction d'une seule variable V_1 , qui est paramétrée par l'état initial du milieu (P_0, V_0). De façon générale, on appelle courbe d'Hugoniot la relation entre deux grandeurs qui caractérisent la matière

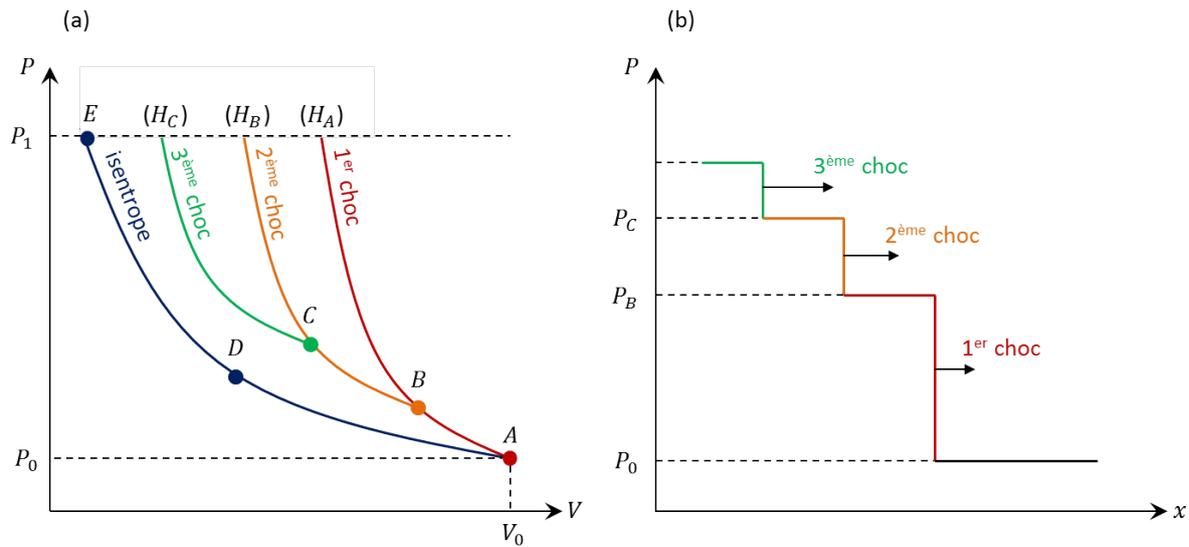


FIGURE 5.3 : Trois chocs consécutifs sont créés dans un matériau. Les courbes d'Hugoniot dans le plan pression-volume spécifique sont indiquées en (a), le profil spatial des discontinuités de la pression à un instant donné est présenté en (b).

sous choc. L'Hugoniot représente donc les états thermodynamiques accessibles par choc et dépend de l'état thermodynamique initial du milieu considéré.

Création d'entropie le long de l'Hugoniot : D'après le second principe de la thermodynamique, on peut relier la variation d'énergie interne à la variation d'entropie et de travail des forces de pression suivant :

$$dE = PdV - TdS, \quad (5.8)$$

avec S l'entropie du système.

À partir de cette équation et en utilisant les relations de Rankine-Hugoniot, on peut montrer que l'on a le long de l'Hugoniot :

$$\left(\frac{dS}{dU_s} \right)_H = \frac{U_p^2}{TU_s} > 0 \quad (5.9)$$

L'entropie augmente donc le long de l'Hugoniot. La transformation engendrée est alors irréversible. La conséquence de cette augmentation est qu'une partie de l'énergie est dissipée dans la matière comprimée sous forme de chaleur.

La figure (5.3) montre ce qu'implique l'augmentation d'entropie dans une compression par choc. On part d'un état initial A de pression P_0 et de volume V_0 . Un premier choc est envoyé dans le matériau, suivi d'une deuxième et d'un troisième. Le premier choc comprime la matière initialement dans les conditions standard et se propage avec une pression P_B . Cet état est situé sur la courbe d'Hugoniot principale (H_A).

Le second choc est généré dans un milieu pré-comprimé et se propage avec une pression $P_C > P_B$. La courbe d'Hugoniot correspondante (H_B) part de l'état B situé sur l'Hugoniot du premier choc. De même, un troisième choc est représenté par un point sur la courbe (H_C) qui part du point C situé sur l'Hugoniot du deuxième choc (H_B).

Les états thermodynamiques de la matière choquée dépendent ainsi des conditions initiales et diffèrent d'une compression isentropique. Cette dernière pouvant être décomposée en plusieurs compressions du même type. Par exemple, la transformation de l'état A vers l'état E sur la figure (5.3) est équivalente à la transformation de l'état A vers l'état D , suivie de la transformation de l'état D vers l'état E . Dans le cas d'une compression due à un choc, cette décomposition n'est pas possible puisque l'augmentation d'entropie modifie le système. De ce fait, l'ensemble des états accessibles à partir d'un état comprimé sont différents des états accessibles à partir de l'état initial A . On ne peut donc pas atteindre les mêmes états thermodynamiques en comprimant un milieu avec un seul choc ou avec une succession de chocs.

Notons que pour de petits chocs, on peut montrer que l'isentrope et l'Hugoniot ne diffèrent au voisinage du point initial qu'à l'ordre 3 [116]. Ainsi, une série de petits chocs, effectuée à la place d'un seul choc puissant, permet de se rapprocher d'une compression isentropique. Cette méthode est notamment utilisée dans les expériences de fusion par confinement inertiel afin de minimiser l'augmentation d'entropie et de comprimer les capsules le plus efficacement possible. C'est ce qui justifie la séquence des chocs permettant l'implosion de la capsule décrite dans l'introduction de ce manuscrit. Dans notre étude des matériaux ablateurs, nous nous contenterons de générer un seul choc, étant donné que l'on veut se comparer à l'Hugoniot principale, calculée à partir de la dynamique moléculaire quantique.

Température du choc : L'augmentation d'entropie le long de l'Hugoniot accroît ainsi la température de la matière comprimée. Cependant, cette grandeur n'intervient pas dans les relations de Rankine-Hugoniot et doit être déterminée d'une autre façon.

À partir de la relation de cohérence thermodynamique (2.7), nous pouvons exprimer la température à partir des états thermodynamiques (P_1, ρ_1, E_1) :

$$T_1(P_1, \rho_1) = \left[\rho_1^2 \left(\frac{\partial E_1}{\partial P_1} \right)_{\rho_1} \right] \left(\frac{\partial T_1}{\partial \rho_1} \right)_{P_1} - \left[\rho_1^2 \left(\frac{\partial E_1}{\partial \rho_1} \right)_{P_1} - P_1 \right] \left(\frac{\partial T_1}{\partial P_1} \right)_{\rho_1}. \quad (5.10)$$

La température ne dépend alors pas uniquement des grandeurs P_1, ρ_1 , et E_1 le long de l'Hugoniot, mais aussi d'une partie de l'espace des phases autour de cette courbe, puisqu'il faut évaluer les dérivées de l'énergie par rapport à la pression et à la densité. Elle ne peut donc pas être directement déduite de ces grandeurs. Dans la pratique, nous obtiendrons la température à l'aide d'une mesure séparée.

Conclusions :

La matière comprimée par une onde de choc est caractérisée par cinq grandeurs, dont trois d'entre elles sont des grandeurs thermodynamiques (P_1, E_1, ρ_1) , les deux autres étant les paramètres du choc (U_s, U_p) . Les équations de conservation de la masse, de l'impulsion et de l'énergie, qui constituent les relations de Rankine-Hugoniot, permettent de relier ces grandeurs à partir de l'état thermodynamique de la matière non choquée (P_0, E_0, ρ_0) . Elles s'écrivent :

$$\rho_1 = \rho_0 \frac{U_s}{U_s - U_p}, \quad (5.11)$$

$$P_1 = P_0 + \rho_0 U_s U_p, \quad (5.12)$$

$$E_1 - E_0 = \frac{1}{2} (P_1 + P_0) (V_0 - V_1). \quad (5.13)$$

où, $V = 1/\rho$ est le volume spécifique. Les équations de Rankine-Hugoniot ne font pas intervenir la température du choc qui doit être déterminée séparément.

5.2.3 Propagation d'une onde de choc à l'interface entre deux milieux

Nous présentons ici les phénomènes qui interviennent lors de la propagation d'un choc à l'interface entre deux matériaux, que nous nommerons par A et par B.

Notons que l'interface entre les deux matériaux est une surface d'équilibre. Ainsi, les pressions et les vitesses fluides, de part et d'autre de l'interface, doivent être continues. Les autres grandeurs peuvent être différentes d'un milieu à l'autre. Par exemple, pour une pression donnée, la valeur de la densité du matériau A est fixée par sa propre équation d'état, indépendamment de la valeur de la densité dans le matériau B. De cette façon, seules la pression P et la vitesse fluide U_p en A et en B doivent être égales à l'interface entre les deux milieux.

La courbe décrivant la relation entre P et U_p est appelée la polaire de choc. Elle représente le lieu des états accessibles lors d'un choc dans le plan (P, U_p) . La figure (5.4) représente la forme générale de la polaire de choc. Si O représente l'état initial d'un milieu quelconque, et M l'état final du choc, alors on appelle droite de Rayleigh la droite OM , et on définit l'impédance de choc comme étant la pente de cette droite. D'après l'équation (5.12) des relations de Rankine-Hugoniot, cette droite est une fonction linéaire de la vitesse fluide et s'écrit : $P = \rho_0 U_s U_p$. L'impédance du choc est donc :

$$Z = \rho_0 U_s. \quad (5.14)$$

Lorsqu'une onde de choc est transmise du milieu A vers le milieu B, deux phénomènes peuvent se produire :

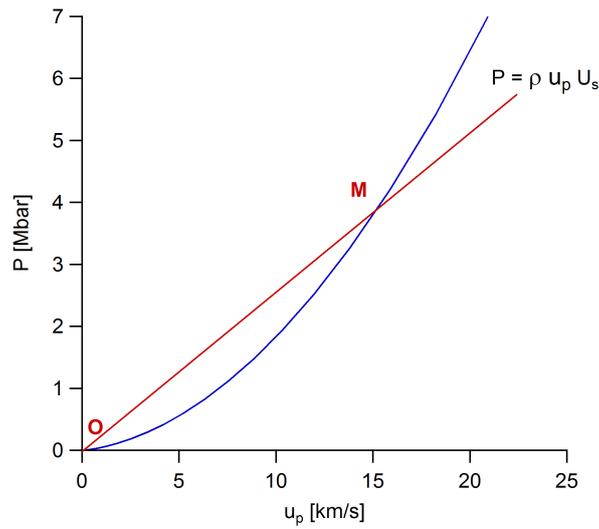


FIGURE 5.4 : Polaire de choc de l'ablateur CHO, extraite de l'équation d'état tabulée QEOS. La pente de la droite OM est l'impédance de choc.

- si $Z_A < Z_B$: un choc de pression supérieure est transmis dans le matériaux B, et est réfléchi dans le matériaux A à la même pression,
- si $Z_A > Z_B$: le choc transmis en A a une pression plus faible et une onde de détente se propage dans le matériau A.

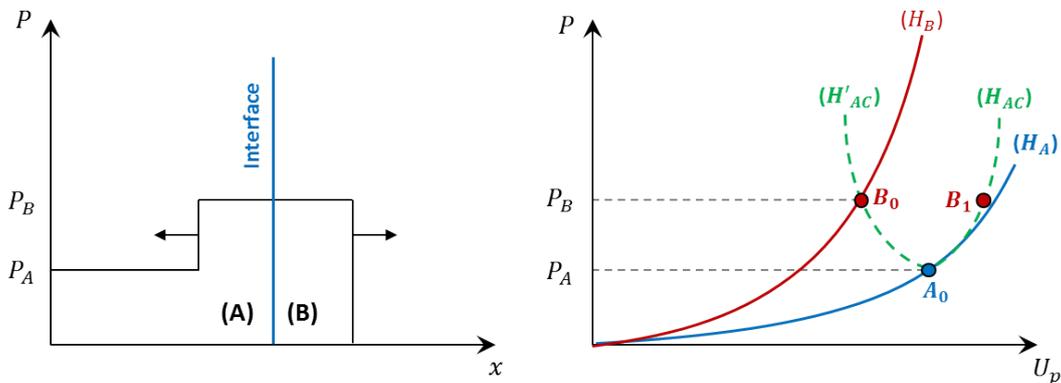


FIGURE 5.5 : Profil de pression après le passage du choc d'un matériau A vers un matériau B, dans ce cas où l'impédance de choc Z_A est inférieure à Z_B , et représentation dans le plan (P, U_p) .

Le premier cas est illustré sur la figure (5.5). L'impédance du choc augmente au passage de l'interface. Une onde de choc se propage initialement dans le milieu A, et amène la matière dans l'état A_0 à la pression P_A . Le choc est ensuite transmis au milieu B et amène la matière dans l'état B_0 à la pression P_B . Du fait de la continuité de la pression et de la vitesse fluide à l'interface, il faut que B_0 appartienne à la polaire du choc réfléchi dans le milieu A. Cette polaire, notée (H'_{AC}) , est la symétrique de la polaire

(H_{AC}) qui est appelée polaire chaude car elle a pour condition initiale l'état A_0 situé sur la polaire (H_A). La pression du choc réfléchi dans le milieu A et transmis dans le milieu B est donnée par l'intersection de (H'_{AC}) avec la polaire de B, notée (H_B).

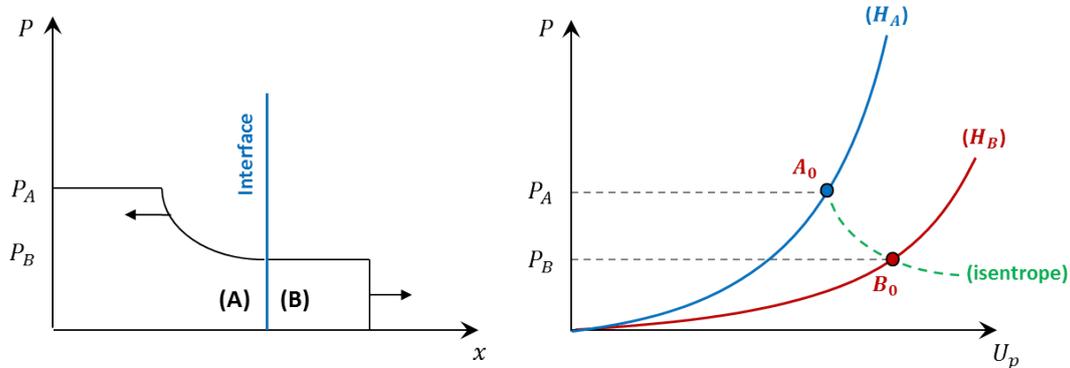


FIGURE 5.6 : Profil de pression après le passage du choc d'un matériau A vers un matériau B, dans ce cas où l'impédance de choc Z_A est supérieure à Z_B , et représentation dans le plan (P, U_p).

Le deuxième cas est illustré sur la figure (5.6). L'impédance du choc diminue au passage de l'interface. De la même façon, l'onde de choc se propage dans le milieu A, et amène la matière dans l'état A_0 à la pression P_A . Le choc est ensuite transmis au milieu B et amène la matière dans l'état B_0 à la pression P_B . Les états A_0 et B_0 se trouvent, respectivement, sur les polaires de choc des matériaux A et B, notée (H_A) et (H_B). Cependant, une onde de détente est réfléchiée dans le matériau A et fait diminuer la pression. Ainsi, du fait de la continuité de la pression et de la vitesse fluide à l'interface, l'état B_0 doit se trouver sur l'isentrope de détente issu de la polaire (H_A) au point A_0 .

5.3 La désadaptation d'impédance

Nous cherchons une méthode expérimentale pour déterminer les états thermodynamiques de la matière choquée. Pour cela, nous disposons des trois relations de Rankine-Hugoniot, et nous devons résoudre un système de trois équations à cinq inconnues. Au moins deux grandeurs doivent donc être mesurées pour déterminer toutes les autres. En général, ce sont les vitesses U_s et U_p qui sont mesurées dans les expériences d'équations d'état. L'observation simultanée de ces deux vitesses conduit alors à une mesure absolue de (P, ρ, T).

Dans le cas d'une compression avec un canon à gaz, l'onde de choc est générée par l'impact d'un projectile lancé à grande vitesse. Ainsi de la même façon que dans le cas du piston illustré sur la figure (5.2), la vitesse fluide U_p est donnée par la vitesse du projectile. La vitesse du choc peut ensuite être déterminée à l'aide d'un diagnostic optique en face arrière de la cible.

Dans nos expériences, l'onde de choc est créée par l'ablation de la matière au contact d'un rayonnement laser. Nous n'avons donc pas accès à la vitesse fluide, et pouvons uniquement obtenir la vitesse de choc (sous réserve de certaines conditions qui seront explicités par la suite). Pour le moment, on considère que l'on a accès à la vitesse du front de choc se déplaçant dans le matériau d'étude. On utilise alors une approche indirecte pour déterminer les états thermodynamiques sous choc à partir des vitesses de choc. Cette méthode s'appelle la désadaptation d'impédance.

5.3.1 Principe

La méthode de la désadaptation d'impédance permet la mesure relative d'un point le long de l'Hugoniot du matériau d'étude à partir de la mesure de la vitesse de choc dans un matériau de référence et dans un échantillon d'intérêt. On utilise alors les phénomènes qui se produisent lorsque l'onde de choc se propage à l'interface entre deux milieux.

Lors de nos expériences, nous avons utilisé deux matériaux de référence différents : l'aluminium et le quartz. On parlera alors de référence aluminium ou quartz . Ces deux matériaux ont des impédances de choc quasiment identiques car leurs densités normales sont proches : $\rho_0 = 2,7 \text{ g/cm}^3$ pour l'aluminium, et $\rho_0 = 2,648 \text{ g/cm}^3$ pour le α -quartz. L'impédance du choc dans le plastique sera inférieure aux impédances de choc dans l'aluminium et dans le quartz. On se trouve alors dans le cas $Z_A > Z_B$ décrit dans la section précédente, et nous devons déterminer une isentrope de détente pour parachever la mesure.

On mesure la vitesse de l'onde de choc se propageant dans chacun des matériaux. En particulier, on s'intéresse au saut de vitesse lors de la transmission du choc du matériau de référence vers le plastique. On note par $U_s^{\text{réf.}}$ et U_s^{CH} ces deux vitesses en amont et en aval de l'interface. La mesure de la vitesse de choc détermine l'impédance du choc dans le domaine (P, U_p) . Le matériau de référence étant parfaitement caractérisé, sa polaire de choc est connue. L'intersection de celle-ci avec l'impédance $Z^{\text{réf.}}$ détermine l'état thermodynamique atteint dans le matériau de référence, juste avant la transmission du choc dans le plastique. À partir de cet état, on trace l'isentrope de détente. L'intersection de l'impédance du choc dans le plastique Z^{CH} avec l'une de ces deux courbes détermine ensuite la pression sous choc P_1 et la vitesse fluide $u_{p,1}$. L'utilisation de la relation de Rankine-Hugoniot (5.15), nous donne enfin la densité ρ_1 du plastique choqué :

$$\rho_1 = \rho_0 \frac{U_s^{\text{CH}}}{U_s^{\text{CH}} - u_{p,1}}. \quad (5.15)$$

Nous verrons que cette méthode permet d'obtenir des pressions et des densités avec une relativement bonne précision, inférieure à 5% pour la pression, et 10% pour la densité. Cependant, elle est très dépendante de notre connaissance de l'équation d'état du matériau de référence et du calcul de l'isentrope

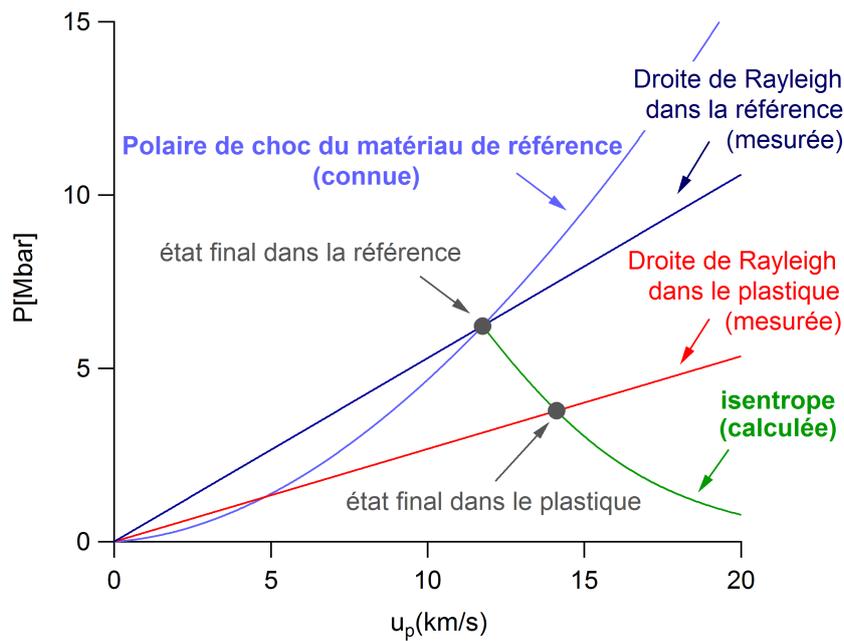


FIGURE 5.7 : Représentation de la méthode de la désadaptation d'impédance pour la mesure relative des équations d'état des matériaux plastiques à partir d'une référence aluminium ou quartz.

de détente. Des changements sur l'Hugoniot principale du matériau de référence peut ainsi conduire à des réinterprétations successives, comme nous le verrons dans le chapitre suivant.

5.3.2 Calcul de l'isentrope de détente

En première approximation, l'isentrope de détente peut être remplacée par l'Hugoniot symétrique dans le plan (P, u_p) . Cette méthode donne de bons résultats lorsque l'impédance de choc dans le matériau de référence et dans l'ablateur sont relativement proches, ou lorsque la pression du choc est inférieure à 2 Mbar [119]. On peut aussi calculer l'isentrope de détente à partir d'une table d'équation d'état. Dans nos expériences, nous avons utilisé l'équation d'état de Mie-Grüneisen qui permet un calcul analytique et facilite les calculs de propagation des erreurs.

Le point de départ de ce calcul est l'état sous choc dans le matériau de référence juste avant la propagation du choc dans le plastique. La pression sur l'isentrope est ensuite déterminée à partir de l'équation d'état de Mie-Grüneisen qui exprime le paramètre de Grüneisen $\Gamma(V)$. Celui-ci décrit la différence de pression entre des états de volume identique sur l'Hugoniot, et est défini par :

$$\Gamma(V) = V \left(\frac{\partial P}{\partial E} \right)_V. \quad (5.16)$$

On exprime ainsi la pression sur l'isentrope, pour un volume spécifique donné, comme :

$$P(V) = P_{\text{hug.}}(V) + \frac{\Gamma(V)}{V} [E(V) - E_{\text{hug.}}(V)], \quad (5.17)$$

où, P et E sont la pression et l'énergie interne sur l'isentrope, et $P_{\text{hug.}}$ et $E_{\text{hug.}}$ la pression et l'énergie interne sur l'Hugoniot.

Calcul itératif de l'isentrope de détente dans le plan (P, V) : Le calcul de l'isentrope de détente s'effectue dans le plan (P, V) par une méthode itérative. On suppose que pour de petits changements de volume, l'isentrope peut être approximée par une Hugoniot. Cela nous permet de l'exprimer à partir d'une série de petits sauts entre différentes courbes d'Hugoniot. Chacun des états calculés est utilisé pour initialiser le calcul suivant.

Cette méthode nécessite de connaître l'état sous choc dans le standard (P_1, V_1) qui servira pour l'initialisation, ainsi que son Hugoniot principale $P_{\text{hug.}}(V; P_0, V_0)$, et le coefficient de Grüneisen $\Gamma(V)$ pour chaque élément de volume.

Pour la première itération, on note P_2 la pression sur l'isentrope pour un volume V_2 . La relation d'Hugoniot s'écrit pour une condition initiale (P_1, E_1, V_1) comme :

$$E_2 - E_1 = \frac{1}{2}(P_2 + P_1)(V_1 - V_2), \quad (5.18)$$

En insérant cette relation dans l'équation (5.17), on obtient :

$$P_2(V_2) = \frac{P_{\text{hug.}}(V_2) + \frac{\Gamma(V_2)}{V_2} [P_1 \frac{V_1 - V_2}{2} + E_1 - E_{\text{hug.}}(V_2)]}{1 - \frac{\Gamma(V_2)}{V_2} (\frac{V_1 - V_2}{2})}, \quad (5.19)$$

où $E_{\text{hug.}}(V_2) = \frac{1}{2}P_{\text{hug.}}(V_2)(V_0 - V_2)$, en supposant que P_0 et E_0 sont négligeables.

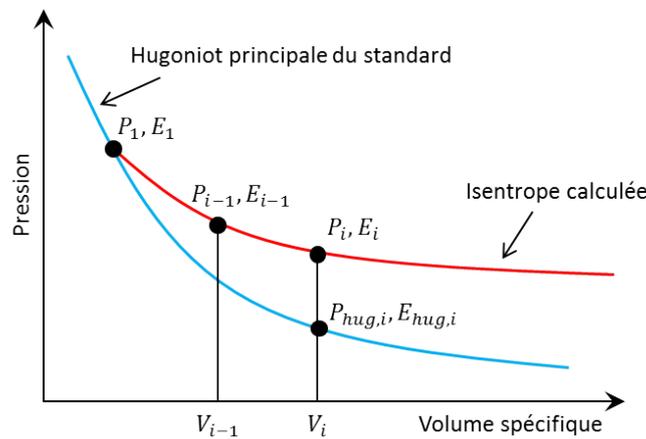


FIGURE 5.8 : Isentrope de détente approximée à partir de l'équation d'état de Mie-Grüneisen, qui relie les pressions et les énergies internes sur et en dehors de l'Hugoniot via le coefficient de Grüneisen.

En généralisant cette expression, on exprime la pression P_i et l'énergie interne E_i sur l'isentrope au

volume spécifique V_i par :

$$P_i = \frac{P_{\text{hug},i} - \left(\frac{\Gamma}{V}\right)_i \left[P_{i-1} \frac{\Delta V}{2} + E_{\text{hug},i} - E_{i-1} \right]}{1 + \left(\frac{\Gamma}{V}\right)_i \frac{\Delta V}{2}}, \quad (5.20)$$

$$E_i = E_{i-1} - (P_i + P_{i-1}) \frac{\Delta V}{2}, \quad (5.21)$$

avec

$$E_{\text{hug},i} = \frac{1}{2} P_{\text{hug},i} (V_0 - V_i), \quad (5.22)$$

$$\Delta V = V_i - V_{i-1}. \quad (5.23)$$

Les conditions initiales imposent :

$$P_1 = P_{\text{hug}}(V_1; P_0, V_0), \quad (5.24)$$

$$E_1 = \frac{1}{2} P_1 (V_0 - V_1). \quad (5.25)$$

Ce processus est présenté sur la figure (5.8). Connaissant l'état initial sous choc dans la référence, on calcule la pression sur l'isentrope pour un élément de volume ΔV . Puis, à partir de cet état, on obtient une nouvelle pression pour un nouveau ΔV . On réitère ce processus jusqu'à ce que l'on atteigne les conditions standard P_0 et V_0 .

Procédure de calcul : Le calcul de l'état final nécessite de mesurer les vitesses de choc dans la référence $U_s^{\text{réf.}}$ et dans le plastique U_s^{CH} à l'interface entre ces deux matériaux. À partir de ces données, une procédure a été mise en place pour obtenir la pression $P_{\text{fin}}^{\text{CH}}$ et la densité $\rho_{\text{fin}}^{\text{CH}}$ des plastiques sous choc. La procédure, illustrée sur la figure (5.7), se déroule de la façon suivante :

1. On trace les droites de Rayleigh dans le plan (P, u_p) à partir des vitesses de choc $U_s^{\text{CH/réf.}}$, suivant :

$$R_{\text{CH/réf.}}(u_p) = 0,01 \rho_0 U_s^{\text{CH/réf.}} u_p, \quad (5.26)$$

où $R_{\text{CH/réf.}}(u_p)$ est en Mbar, ρ_0 en g/cm^3 , U_s et u_p en km/s.

2. On trace ensuite la polaire de choc du matériau de référence. On utilise alors une forme analytique de $U_s = f(u_p)$ ajustée sur des données expérimentales. On en déduit la pression et le volume spécifique équivalents à partir des relations de Rankine-Hugoniot dans le matériau de référence :

$$P(u_p) = 0,01 \rho_0 f(u_p) u_p, \quad (5.27)$$

$$V(u_p) = \frac{1}{\rho_0} \frac{f(u_p) - u_p}{f(u_p)}. \quad (5.28)$$

3. L'état sous choc dans la référence est déterminé par l'intersection de la polaire de choc avec la droite de Rayleigh $R_{\text{réf.}}$. Cet état servira de point de départ pour le calcul de l'isentrope de détente.
4. Un calcul itératif dans le plan (P, V) est réalisé pour obtenir l'isentrope de détente. On utilise alors les relations (5.20-5.25). Les valeurs dans le plan (P, u_p) sont ensuite déduites de celles calculées dans le plan (P, V) à partir de l'incrément de vitesse : $\Delta u_p = \sqrt{-\Delta V \Delta P}$.
5. L'état final sous choc dans le matériau d'étude, noté $(P_{\text{fin.}}^{\text{CH}}, u_{\text{p,fin.}}^{\text{CH}})$, est indiqué par l'intersection de l'isentrope avec la droite de Rayleigh R_{CH} dans le plan (P, u_p) .
6. De la vitesse fluide de l'état final $u_{\text{p,fin.}}^{\text{CH}}$ et de la mesure de la vitesse de choc U_s^{CH} , on détermine la densité équivalente sous choc :

$$\rho_{\text{fin.}}^{\text{CH}} = \rho_0 \frac{U_s^{\text{CH}}}{U_s^{\text{CH}} - u_{\text{p,fin.}}^{\text{CH}}} \quad (5.29)$$

Nous obtenons ainsi une mesure relative de la pression et de la densité le long de l'Hugoniot dans le plastique.

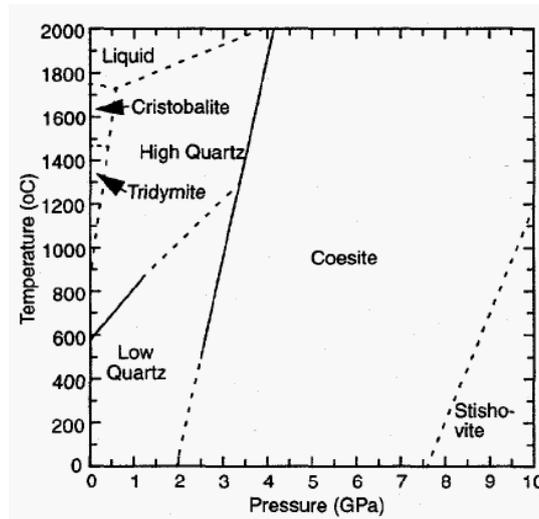


FIGURE 5.9 : Diagramme de phase du quartz dans le plan pression-température [120].

Valeur du coefficient de Grüneisen : Lors du calcul de l'isentrope de détente, il est nécessaire d'introduire des hypothèses sur la valeur du coefficient de Grüneisen. Au lieu d'utiliser une formule théorique, celui-ci peut être estimé à partir de données expérimentales. On utilise alors deux courbes d'Hugoniot, obtenue pour un même matériau mais à partir de densités initiales différentes. Cette méthode est illustrée sur la figure (5.10). Les courbes d'Hugoniot de volume initial $V_{0,1}$ et $V_{0,2}$ sont respectivement notées (H_1) et (H_2) . L'écart de pression et d'énergie interne pour un volume V identique donne ensuite la valeur

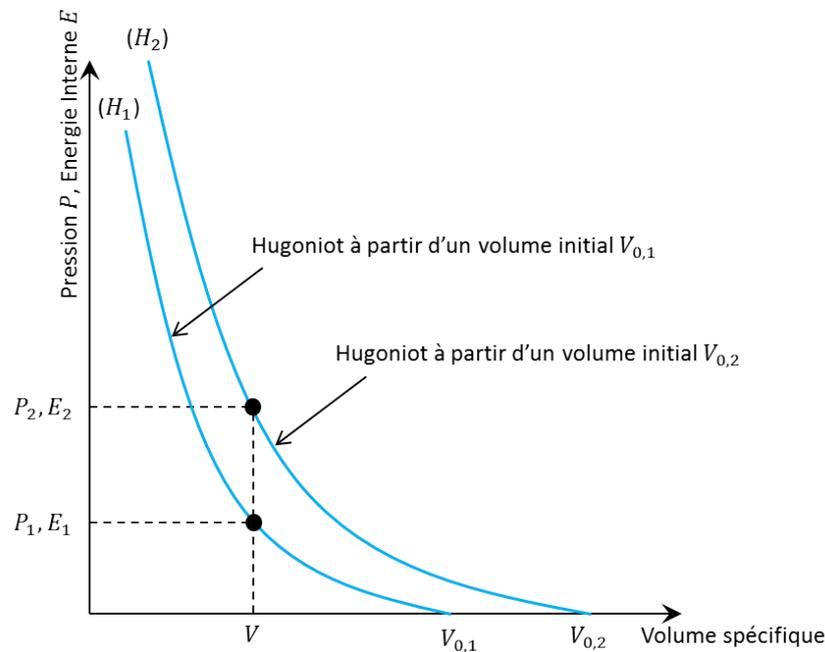


FIGURE 5.10 : Mesure du coefficient de Grüneisen à partir de deux Hugoniot d'un même matériau obtenues pour des densités initiales différentes.

du coefficient de Grüneisen :

$$\Gamma(V) = \frac{P_2 - P_1}{E_2 - E_1} V. \quad (5.30)$$

Cette méthode a été mise en pratique par R. F. Trunin [121, 122, 123] et S.-N. Luo [124, 125] pour mesurer le coefficient de Grüneisen du quartz. Ils ont alors utilisé une propriété intéressante de la silice : ses phases hautes pressions peuvent être ramenées de façon métastable à une pression ambiante avec des densités normales différentes. C'est le cas de la stishovite et de la coésite, comme présentées sur le diagramme de phase de la silice de la figure (5.9). Les densités normales de ces deux polymorphe de la silice sont [120] : $\rho_0 = 4,3 \text{ g/cm}^3$ pour la stishovite et $\rho_0 = 2,9 \text{ g/cm}^3$ pour la coésite.

S.-N. Luo [124, 125] a mesuré de cette façon le coefficient de Grüneisen du quartz dans la phase stishovite à partir de l'Hugoniot du quartz, de la coésite et de la stishovite. Il a ainsi montré que Γ chute de $\approx 1,35$ dans les conditions normales à $\approx 0,7$ près du point de fusion. Dans la phase fluide, R. F. Trunin [121, 122, 123] a évalué Γ en comparant les Hugoniot du quartz à $\rho_0 = 2,65 \text{ g/cm}^3$ avec les Hugoniot de deux formes poreuses à $1,75 \text{ g/cm}^3$ et $1,35 \text{ g/cm}^3$. Des valeurs comprises entre 0,6 et 0,66 ont ainsi été obtenues.

Une autre façon d'évaluer le coefficient de Grüneisen est d'utiliser les mesures de (U_s, U_p) le long de l'Hugoniot [126]. En supposant une variation linéaire de la forme $U_s = C + SU_p$, on exprime le

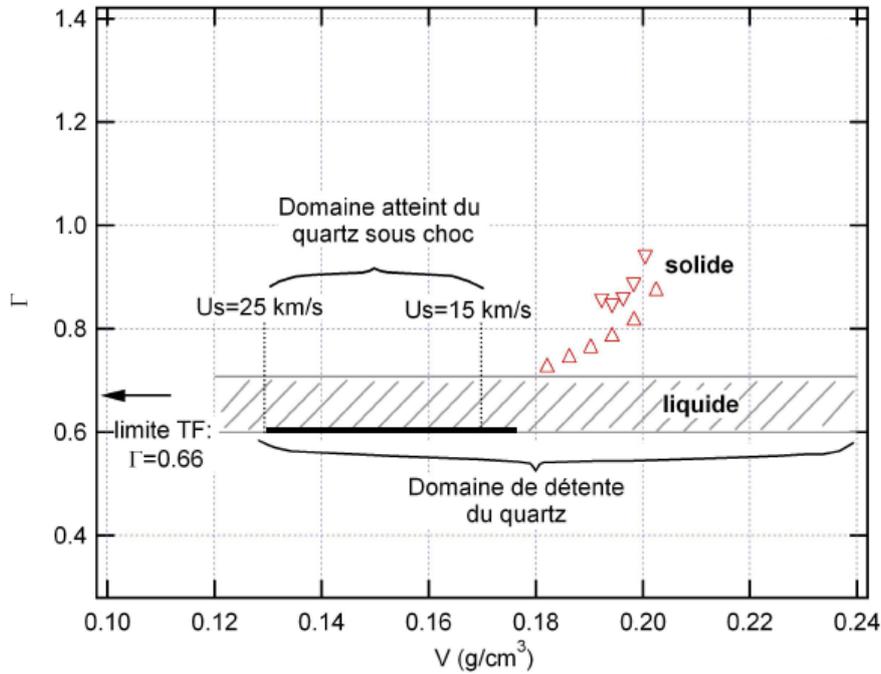


FIGURE 5.11 : Coefficient de Grüneisen du quartz en fonction du volume spécifique issu de [129]. La zone hachurée correspond aux mesures effectuées par Trunin [122]. Les triangles droits et renversés sont les mesures de Luo et al. [124]. Le trait noir épais correspond aux mesures de Hicks et al. [128].

coefficient de Grüneisen comme :

$$\Gamma \approx 2(S - 1). \tag{5.31}$$

Cette approximation est exacte dans la limite de compression, où les états proches sur l'Hugoniot sont isochores. Elle est supposée valide pour des pressions de quelques mégabars [127] où la matière est dans un état liquide. En utilisant cette hypothèse, D. Hicks [128] obtient une valeur de $\Gamma \approx 0,6$ pour des pressions sur l'Hugoniot du quartz entre 2 et 15 Mbar.

L'ensemble des valeurs mesurées du coefficient de Grüneisen du quartz est présentée sur la figure (5.11). Ces résultats montrent que le coefficient de Grüneisen est constant dans la phase liquide.

D. Hicks [130] s'est intéressé à la dissociation du quartz. À partir de données expérimentales de réflectivité du front de choc et de température, il a montré que celle-ci est presque complète pour des températures supérieures à 20000 K et totale au dessus de 35000 K. Ces résultats sont en accord avec des simulations ab initio réalisées par Y. Laudernet [61]. Ainsi, au dessus de 20000 K le quartz se comporte comme un fluide simple à haute température avec un coefficient Γ presque constant. La limite observée pour la plupart des matériaux à hautes températures et hautes pressions est de $2/3$. Elle correspond à la valeur obtenue pour un gaz parfait. Nous considérerons les chocs suffisamment forts pour que le quartz

soit dans la phase liquide et nous prendrons la valeur : $\Gamma = 0,64 \pm 0,11$ [131].

R. F. Trunin [122] a effectué des mesures d'Hugoniot pour différents matériaux dont l'aluminium. À partir d'états mesurés sur une Hugoniot secondaire et sur l'Hugoniot principale, il a estimé le coefficient de Grüneisen dans la phase liquide à : $\Gamma = 0,67 \pm 0,08$. Tout comme pour le quartz, nous supposons que la température générée par nos chocs est suffisante pour considérer l'aluminium comme un liquide monoatomique et nous prendrons la valeur mesurée par R. F. Trunin.

Autre méthode utilisée pour le calcul de l'isentrope : Pour avoir plus de précision dans la détermination des états thermodynamiques sous choc des plastiques, nous utiliserons, en complément, les résultats des travaux de M. Knudson et M. Desjarlais sur le quartz [132] et sur l'aluminium [133]. Ils ont proposé une approche plus précise pour calculer l'isentrope de détente à partir d'un modèle analytique ajusté sur des calculs QMD et validé par des expériences. Cette méthode utilise, de la même façon, l'équation d'état de Mie-Grüneisen. Cependant, une Hugoniot effective et un coefficient de Grüneisen effectif non constant sont introduits pour déterminer les pressions sur l'isentrope.

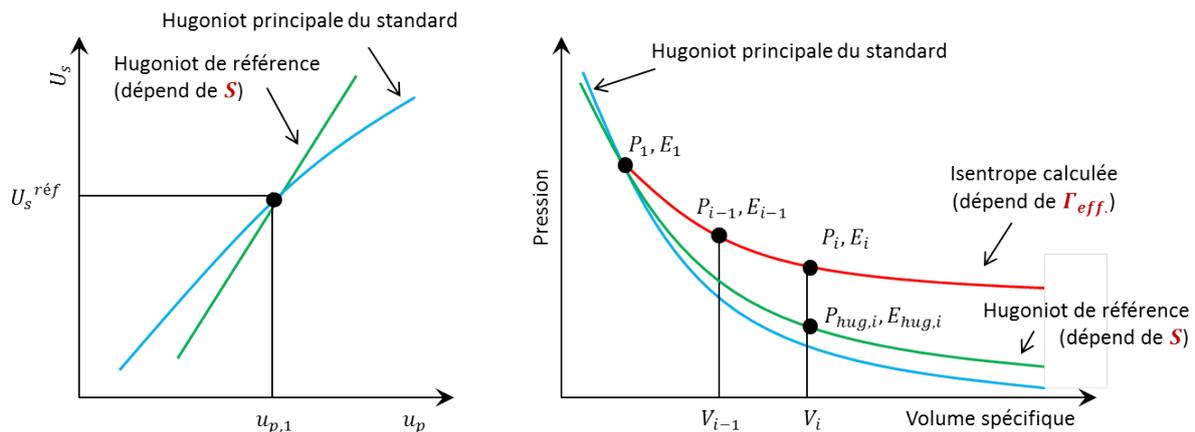


FIGURE 5.12 : Isentrope de détente approximée à partir de l'équation d'état de Mie-Grüneisen avec les modifications de Knudson.

Cette méthode est présentée sur la figure (5.12). L'Hugoniot effective est calculée dans le cadre de l'approximation linéaire dans le plan (U_s, u_p) . Elle s'écrit donc sous la forme : $U_s = C_0 + S u_p$, avec C_0 et S deux coefficients. Le premier est une constante déterminée par l'état initial dans le standard $(P_1, u_{p,1})$:

$$C_0 = \frac{P_1}{\rho_0 u_{p,1}} - S u_{p,1}. \quad (5.32)$$

Le deuxième est un paramètre libre. L'Hugoniot effective s'écrit ainsi dans le plan (U_s, u_p) comme :

$$U_s = \frac{P_1}{\rho_0 u_{p,1}} + S(u_p - u_{p,1}), \quad (5.33)$$

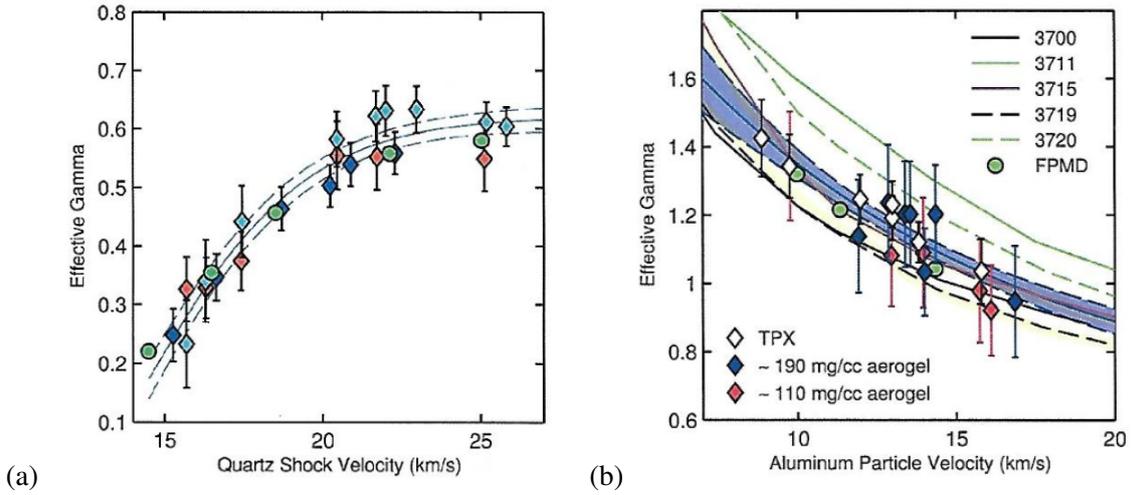


FIGURE 5.13 : Coefficient de Grüneisen effectif déterminée dans le modèle de Knudson pour le quartz en (a) et pour l'aluminium en (b). Les points de couleurs correspondent à des mesures de la détente des deux matériaux avec un standard TPX (en cyan), un standard d'aérogel de silice à $\approx 110 \text{ mg/cm}^3$ (en rouge) et à $\approx 190 \text{ mg/cm}^3$ (en bleu). Les points verts correspondent quant à eux aux calculs de dynamique moléculaire quantique. Les courbes en trait plein sont issues de différentes équations d'état Sésame.

et est une fonction de u_p . À partir de cette équation et des relations de Rankine-Hugoniot, on détermine l'Hugoniot effective dans le plan (P, V) . Puis, l'isentrope de détente est calculée par une méthode itérative à partir des valeurs de Γ_{eff} . Les vitesses fluides u_p sont ensuite déduites de la pression sur l'isentrope $P_S(V)$ par :

$$u_p = u_{p,1} + \int_{P_1}^P V \frac{dP_S}{c_s}, \quad (5.34)$$

où, c_s est la vitesse du son le long de l'isentrope de détente, donnée par :

$$c_s^2 = -V \left. \frac{\partial P}{\partial V} \right|_S. \quad (5.35)$$

De cette façon, deux paramètres peuvent varier dans le modèle proposé par Knudson : le coefficient S qui fixe l'Hugoniot effective, et le coefficient de Grüneisen effectif Γ_{eff} . Leurs valeurs ont alors été optimisées pour que le modèle analytique restitue des simulations QMD ainsi que des mesures expérimentales. Le régime étudié s'étend pour des pressions initiales sous choc comprises entre 3 et 12 Mbar dans le quartz et, comprises entre 4 et 12 Mbar dans l'aluminium.

La détermination expérimentale des valeurs de S et de Γ_{eff} consiste à propager une onde de choc dans une cible plane composée d'une couche de quartz ou d'aluminium, puis d'un standard de plus faible impédance en face arrière. Les courbes d'Hugoniot du matériau d'intérêt (ici le quartz ou l'aluminium) et du standard sont alors connues. La mesure de la vitesse de choc ou de la vitesse fluide à l'interface entre les deux milieux fixe donc l'état dans le matériau d'étude et dans le standard. Il suffit alors de

calculer plusieurs isentropes de détente pour diverses valeurs de S et de Γ_{eff} , et de déterminer celles qui restituent le mieux l'état sous choc dans le standard.

Les chocs ont été créés sur la machine Z du laboratoire Sandia [134]. Une plaque en aluminium a été accélérée par des champs magnétiques avant de percuter la cible. Trois standards de plus faible impédance que le quartz et l'aluminium ont été utilisés : le polyméthylpentène plus communément appelé TPX, et deux aérogels de la silice d'une densité normale de $\approx 110 \text{ mg/cm}^3$ et $\approx 190 \text{ mg/cm}^3$.

La figure (5.13) représente les valeurs du coefficient de Grüneisen effectif obtenues pour le quartz et l'aluminium. On remarque des variations différentes entre ces deux matériaux. Pour le quartz, Γ_{eff} croît avec la vitesse de choc et sature autour de 0,6 à haute pression. Pour l'aluminium, le comportement inverse se produit, Γ_{eff} décroît pour se stabiliser à haute pression à une valeur inférieure à 1. Notons que ces paramètres n'ont pas de réel sens physique. Ils sont dépendants du modèle utilisé.

Une fonction analytique a été ajustée sur les valeurs expérimentales et numériques de S et Γ_{eff} par rapport à U_s ou u_p . Pour le quartz, S est choisi comme étant constant à 1,197, et Γ_{eff} est donné par la relation :

$$\Gamma_{\text{eff}} = a_1 \left(1 - e^{-a_2(U_s - a_3)^{3/2}} \right), \quad (5.36)$$

avec $a_1 = 0,619$, $a_2 = 0,0882 \text{ (km/s)}^{-2/3}$, et $a_3 = 4,357 \text{ km/s}$.

Pour l'aluminium, la fonction (5.37) a été ajustée sur les valeurs de S et Γ_{eff} :

$$f(u_p) = a_1 \left(1 + a_2 e^{-a_3 u_p} \right). \quad (5.37)$$

Les coefficients sont : $a_1 = 1,189$, $a_2 = 0,4883$, $a_3 = 4,0652 \text{ (km/s)}^{-1}$ pour S et $a_1 = 0,6$, $a_2 = 1,942$, $a_3 = 0,0951 \text{ (km/s)}^{-1}$ pour Γ_{eff} .

Conclusions :

La mesure indirecte des états (P, ρ) le long de l'Hugoniot des plastiques est réalisée à l'aide de la méthode de la désadaptation d'impédance. Cette méthode nécessite de mesurer la vitesse de choc dans un standard et dans le plastique, à l'interface entre ces deux matériaux, ainsi que le calcul d'une isentrope de détente. Nous utiliserons deux standards de densités normales proches : le quartz et l'aluminium. Deux méthodes analytiques basées sur l'équation d'état de Mie-Grüneisen seront utilisées pour calculer l'isentrope de détente. La première utilise un coefficient de Grüneisen constant issu de mesures expérimentales. La seconde considère le modèle de M. Knudson avec des paramètres ajustés sur des résultats de dynamique moléculaire quantique et des données expérimentales.

5.4 La création d'une onde de choc avec un laser

Nous allons décrire les mécanismes de formation d'une onde de choc avec des lasers de puissance. Une impulsion laser longue (de quelques ns) et intense ($I_{\text{laser}} > 10^{12} \text{ W/cm}^2$) interagit avec une cible. Au cours des tout premiers instants de l'interaction (quelques ps), l'onde laser pénètre dans la matière sur une petite épaisseur, appelée épaisseur de peau. À l'intérieur de cette épaisseur, les électrons sont accélérés par le champ électrique de l'onde. Ils oscillent, entrent en collision avec les ions, et chauffent la matière qui change d'état. Dans notre cas, l'onde laser est intense et on se place dans un régime à haut flux. Un plasma très chaud (quelques keV) et peu dense se forme à la surface de l'échantillon. La détente du plasma dans le vide entraîne, par effet fusée, la création d'une onde de choc qui se propage vers l'intérieur de la cible et comprime cette dernière.

Dans la partie 5.4.1, nous allons décrire les mécanismes d'absorption et de transport de l'énergie laser. Par la suite, nous détaillerons le processus de création de l'onde de choc (dans la partie 5.4.2). Enfin, nous présenterons les installations laser qui ont été utilisées pour générer des chocs dans les plastiques CHO et CHOSi (dans la partie 5.4.3).

5.4.1 Absorption et transport de l'énergie laser

La relation de dispersion d'une onde électromagnétique de pulsation ω et de vecteur d'onde k s'écrit dans un plasma :

$$c^2 k^2 = \omega^2 - \omega_p^2, \quad (5.38)$$

où, c est la vitesse du son, et ω_p la fréquence du plasma qui est liée à la densité électronique n_e par :

$$\omega_p = \sqrt{\frac{n_e e^2}{\epsilon_0 m_e}}. \quad (5.39)$$

e , m_e et ϵ_0 sont respectivement la charge, la masse de l'électron et la permittivité diélectrique du vide.

Une fois le plasma créé en surface de la cible, le laser se propage dans celui-ci et rencontre un profil de densité électronique croissant. Il est alors absorbé jusqu'à une certaine valeur de la densité électronique, qui satisfait à la condition : $\omega = \omega_p$. Cette densité est appelée la densité critique, notée n_c et définie comme :

$$n_c = \frac{\epsilon_0 m_e}{e^2} \omega^2 = \frac{1,1 \cdot 10^{21}}{\lambda^2 [\mu\text{m}]} [\text{cm}^{-3}] \quad (5.40)$$

La densité critique sépare ainsi le plasma en deux zones : une zone d'interaction pour des densités inférieures à la densité critique n_c , et dans le cas d'un matériau de Z faible ($Z < 10$), une zone de conduction pour des densités comprises entre la densité critique et la densité normale. La figure (5.14) présente les profils de densités et de température d'un cible irradiée par un impulsion laser. Dans la

zone d'interaction, également appelée couronne, le rayonnement laser se propage et dépose son énergie par des mécanismes d'absorption. Cette zone est généralement isotherme (\approx keV) et est le siège de nombreux mécanismes non-linéaires (instabilités paramétriques) résultant de l'interaction du faisceau laser avec le plasma. Dans la zone de conduction, l'énergie du laser est transportée vers le solide par conduction thermique.

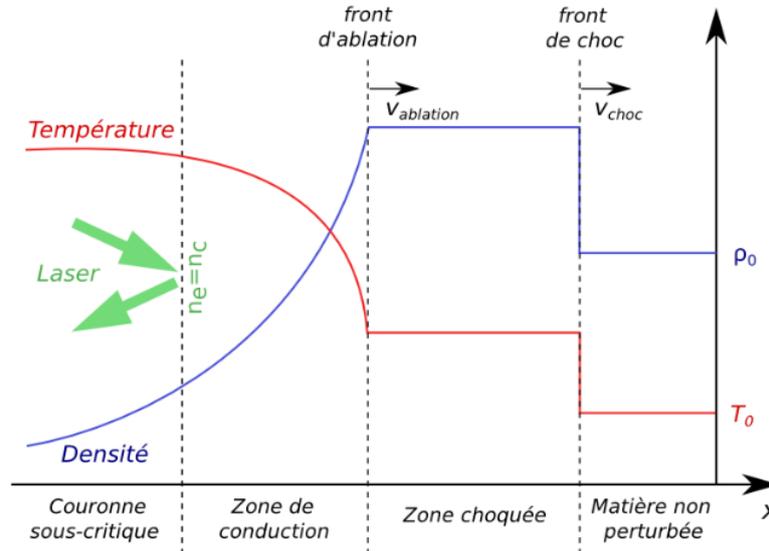


FIGURE 5.14 : Profils de la densité et de la température d'une cible irradiée par un impulsion laser intense pour un matériau ablaté de numéro atomique $Z < 10$.

Les deux principaux mécanismes d'absorption de l'énergie laser sont l'absorption résonnante et l'absorption collisionnelle.

Absorption résonnante : Ce mécanisme se produit lorsque l'onde laser arrive en incidence oblique sur la cible avec une polarisation dans la plan d'incidence. Il existe alors une composante du champ électrique qui interagit avec les électrons de façon résonnante et génère une onde plasma longitudinale de grande amplitude au voisinage de la densité critique. Les champs électriques associés à cette onde peuvent être beaucoup plus grands que le champ de l'onde laser. Des électrons à forte énergie sont alors créés. Ils peuvent pénétrer en profondeur dans l'échantillon et le préchauffer en aval du front de choc. Ce phénomène modifie alors l'état thermodynamique initial du matériau à étudier, chose que nous devons éviter lors de nos expériences. Des études théoriques et expérimentales [135] ont montré que l'absorption résonnante est négligeable devant l'absorption collisionnelle si :

$$I_{\text{laser}} \leq \frac{10^{14}}{\lambda^2 [\mu\text{m}]} \quad (5.41)$$

Cette relation sera vérifiée dans nos expériences et nous négligerons l'absorption résonnante.

Absorption collisionnelle : Ce processus, également appelée Bremsstrahlung inverse, est dominant dans nos expériences. Il consiste en l'absorption d'un photon sur un électron libre au voisinage d'un ion. L'énergie d'oscillation des électrons est alors convertie en une énergie thermique. On décrit l'absorption de l'intensité laser I_{laser} par la relation :

$$\frac{dI_{\text{laser}}}{dx} = -\alpha I_{\text{laser}}, \quad (5.42)$$

α [cm^{-1}] est le coefficient d'absorption. En utilisant le modèle classique de Drude-Lorentz pour décrire l'effet de l'onde laser sur le plasma, on peut l'écrire comme :

$$\alpha = \frac{v_{ei} \omega_p^2}{c \omega^2 \sqrt{1 - n_e/n_c} \left[1 + (v_{ei}/\omega)^2 \right]}, \quad (5.43)$$

avec v_{ei} la fréquence de collision électron-ion donnée par [136] :

$$v_{ei} = 3,610^{-6} \log \Lambda \frac{n_e [\text{cm}^{-3}] Z^*}{T_e^{3/2} [\text{eV}]}. \quad (5.44)$$

Dans cette relation, Z^* est le degré d'ionisation, T_e la température électronique, et $\log \Lambda$ le logarithme coulombien. Ce dernier est défini à partir de la longueur de Debye λ_D et d'un paramètre d'impact b_0 pour un angle de 90° :

$$\log \Lambda = \log \frac{\lambda_D}{b_0}. \quad (5.45)$$

En introduisant la relation (5.44) dans (5.43), et en supposant que la fréquence de collision électron-ion est négligeable devant la pulsation laser, c'est-à-dire $v_{ei} \ll \omega$, on exprime le coefficient d'absorption sous la forme :

$$\alpha [\text{cm}^{-1}] = 8,710^{-38} \log \Lambda \frac{n_e^2 [\text{cm}^{-3}] \lambda^2 [\mu\text{m}] Z^*}{T_e^{3/2} [\text{eV}] \sqrt{1 - n_e/n_c}} \quad (5.46)$$

L'absorption diminue lorsque la température électronique augmente et croît avec la densité électronique. Elle présente un maximum très piqué au voisinage de la densité critique où l'absorption collisionnelle se produit majoritairement.

Transport de l'énergie dans la zone de conduction : L'énergie laser absorbée dans la zone d'interaction est ensuite transportée vers les zones denses et froides. Dans le cas où la cible est composée d'un matériau léger, de numéro atomique $Z < 10$, le transport de l'énergie laser s'effectue essentiellement par conduction thermique électronique. La température décroît jusqu'aux front d'ablation, comme illustré sur la figure (5.14). Dans le cas où le matériau ablaté à un numéro atomique $Z > 10$, le transport de l'énergie ne se fait plus uniquement par conduction thermique mais aussi par l'émission et l'absorption du rayonnement X produit lors de l'interaction laser-matière.

5.4.2 Expansion du plasma et création du choc

L'interaction du laser avec la cible conduit à la création d'un plasma en surface suivi de sa détente rapide dans le vide. Cette dernière exerce, par effet fusée, une pression très importante dans le solide et entraîne l'apparition, puis la propagation d'une onde de choc à l'intérieur de la cible. On se place alors dans le cas où la vitesse de choc est supérieure à la vitesse d'ablation. La formation de l'onde de choc est donc la conséquence directe de l'ablation du plasma et de son expansion dans le vide.

L'étude de l'écoulement du plasma permet d'obtenir des lois d'échelle pour la pression d'ablation égale à la pression du choc. P. Mora [137] a montré que cette pression s'écrit en fonction de l'intensité laser I_{laser} [10^{14} W/cm²], de sa longueur d'onde λ [μm] et de sa durée d'impulsion τ [ns], ainsi que du numéro atomique Z et du degré moyen d'ionisation Z^* du matériau ablaté comme :

$$P [\text{Mbar}] \approx 11,6 I_{\text{laser}}^{3/4} \lambda^{-1/4} \left(\frac{A}{2Z} \right)^{7/16} \left(\frac{Z^* \tau}{3,5} \right)^{-1/8}. \quad (5.47)$$

Cette loi d'échelle est valable si :

1. l'absorption collisionnelle est le processus d'absorption dominant. Nous avons déjà vu que c'est le cas dans nos expériences.
2. l'intensité laser ne dépasse pas une valeur critique I_c [W/cm²], donnée par l'expression :

$$I_c \approx 2 \times 10^{13} \lambda^{-5} \left(\frac{Z^*}{3,5\tau} \right)^{3/2} \left(\frac{A}{2Z} \right)^{5/4}. \quad (5.48)$$

Comme nous le verrons par la suite, nous utiliserons des cibles planes multicouches avec un plastique commercial comme ablateur. Dans ce cas, en considérant que $Z^* = 3,5$ et $\tau = 1,5$, l'intensité seuil est de :

$$I_{c,\text{exp}} \approx 1,53 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2. \quad (5.49)$$

Dans toutes les expériences réalisées, ce seuil ne sera pas dépassé, les intensités typiques obtenues variant de $1,7 \cdot 10^{13}$ W/cm² à $9 \cdot 10^{13}$ W/cm².

Les pressions d'ablation obtenues dans nos expériences seront alors comprises entre 1 et 10 Mbar.

5.4.3 Les installations laser LULI2000 et GEKKO XII

Nous avons utilisé deux installations laser de tailles moyennes pour générer des chocs dans les matériaux d'étude : l'installation laser LULI2000 à l'école Polytechnique et l'installation GEKKO XII à l'université d'Osaka au Japon.

L'installation LULI2000 comporte deux chaînes principales convertis à 2ω (527 nm). Les faisceaux laser arrivent sur la cible avec un angle de plus ou moins 5 degrés par rapport à la normale de la cible (conditions de la chambre expérimentale 2 utilisée durant ce travail de recherche). L'impulsion est carrée d'une durée de 1,5 ns. L'énergie maximum par chaîne est de 500 J à 2ω . La focalisation s'effectue à l'aide d'une lame de phase de 600 μm de diamètre.

L'installation GEKKO XII dispose de 12 faisceaux laser, dont 9 d'entre eux sont convertis à 3ω (351 nm), les trois autres étant convertis à 2ω (527 nm). L'orientation des faisceaux par rapport à la normale de la cible est de 30 degrés. Les faisceaux laser ont une impulsion carrée de 2,5 ns à mi-hauteur avec un temps de montée de l'ordre de 100 ps et peuvent atteindre 1 600 J, ce qui permet de faire varier l'intensité du choc dans la cible. Notons que la pression d'ablation produite par un faisceau laser sur une cible évolue en $1/\lambda^4$, où λ est la longueur d'onde du laser (équation 5.47). En conséquence, pour une même intensité laser et une même durée d'impulsion, la pression d'ablation à 3ω sera plus élevée qu'à 2ω . Des lames de phase sont utilisées pour obtenir une tache focale uniforme sur un diamètre de 600 μm .

Dans nos expériences, nous générons des chocs plans, et regardons leur propagation sur une largeur de quelques micromètres. Il est alors important que le front de choc soit bien uniforme. Lors de la focalisation du faisceau, des points de surintensité peuvent se former à cause de l'interférence du faisceau avec lui-même. Ces points sont plus communément appelé « points chauds ». Ils entraînent des effets non linéaires indésirables et des instabilités hydrodynamiques dues à un éclairage non uniforme de la cible. Les lames de phase permettent de palier ce problème en uniformisant la tâche focale du faisceau laser. La configuration de l'installation GEKKO XII, nous a permis de générer des chocs avec une très bonne planéité. Sur l'installation LULI2000 en revanche, les lames de phase utilisées n'ont pas permis d'obtenir un front de choc uniforme, un point chaud central étant présent sur un grand nombre de tirs. Les deux faisceaux ont alors dus être défocalisés pour atténuer cet effet.

5.5 Les diagnostics optiques

La détermination indirecte des états (P, ρ) sous choc nécessite de mesurer la vitesse du front de choc lors de sa propagation à l'interface entre un matériau de référence et le plastique. De plus, nous avons vu que l'onde de choc provoque un chauffage important. L'objectif de nos expériences est donc de mesurer des vitesses et des températures résolues dans l'espace et dans le temps.

Ces mesures sont réalisées en observant la face arrière de la cible. La mesure de vitesse se fait à

l'aide d'un diagnostic VISAR² et l'utilisation d'un faisceau sonde. La mesure de température consiste à détecter la luminosité émise lors du passage de l'onde de choc.

5.5.1 Diagnostic actif : interférométrie VISAR

Le VISAR [138, 139, 140] est un diagnostic interférométrique fréquemment utilisé pour mesurer la vitesse de surface réfléchissante en mouvement. Dans le cas de nos expériences, les matériaux plastiques CHO et CHOSi sont transparents. Pour des chocs suffisamment forts, ces matériaux sont métallisés au niveau du front de choc qui devient une surface réfléchissante. L'utilisation d'un VISAR permet ainsi d'accéder directement à la vitesse de choc.

5.5.1.1 Principe

Le diagnostic VISAR se compose d'un interféromètre de Mach-Zehnder dans lequel on introduit un étalon pour retarder l'un des deux bras. Une onde de longueur d'onde λ interagit avec une onde de longueur d'onde $\lambda + \Delta\lambda$ où $\Delta\lambda$ est dû à l'effet Doppler. Cela se traduit par un décalage des franges proportionnel à la vitesse de la surface réfléchissante.

Interféromètre de Mach-Zehnder : Le schéma d'un interféromètre de Mach-Zehnder à petit angle est présenté sur la figure (5.15). Il comporte une lame séparatrice d'entrée S_1 qui divise le faisceau incident en deux. Chacun des faisceaux est ensuite réfléchi par des miroirs notés M_1 et M_2 , puis se recombinent au niveau d'une lame séparatrice de sortie S_2 légèrement inclinée d'un angle α . Les distances entre les lames séparatrices et les miroirs sont égales deux à deux, les chemins optiques sont identiques. La séparatrice de sortie étant inclinée d'un angle α , on forme un coin d'air. On introduit ainsi une différence de marche entre les deux bras de l'interféromètre. Des franges horizontales se forment alors sur la séparatrice S_2 avec un interfrange $i = \lambda / \sin \alpha$. Les franges sont ensuite imagées sur un écran.

Effet Doppler : Si avant d'entrer dans l'interféromètre, on fait réfléchir un faisceau sonde sur une surface réfléchissante en mouvement, alors sa longueur d'onde évolue au cours du temps par effet Doppler. Le changement de fréquence du faisceau sonde est donné par :

$$\lambda(t) = \lambda_0 \frac{1 - \frac{v(t)}{c}}{1 + \frac{v(t)}{c}} \quad (5.50)$$

où $v(t)$ est la vitesse de la surface réfléchissante, c la vitesse de la lumière et λ_0 la longueur d'onde du faisceau incident.

2. Acronyme anglais signifiant « Velocity Interferometer System for Any Reflector », demeurant identique en français avec « Vélocimètre Interférométrique pour une Surface Ayant une Réflectivité ».

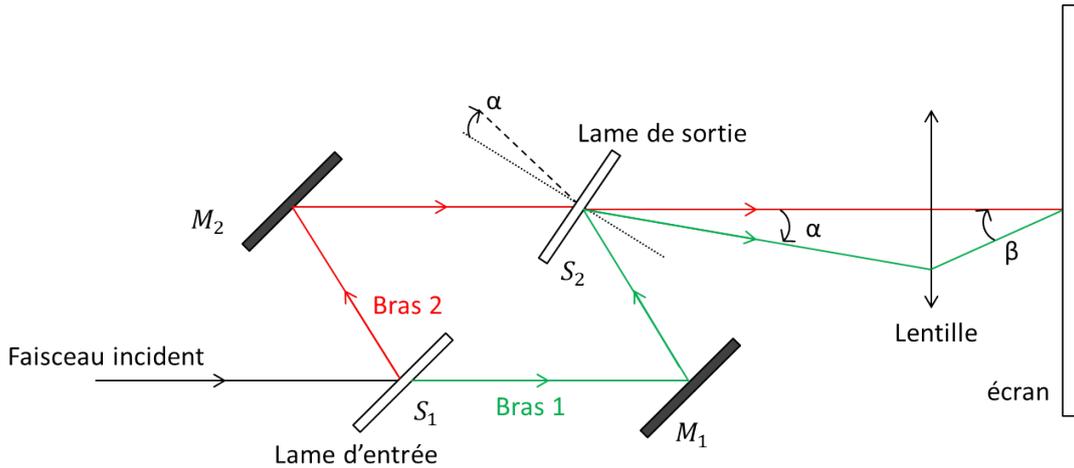


FIGURE 5.15 : Interféromètre de Mach-Zehnder. M_1 et M_2 sont des miroirs, S_1 et S_2 des séparatrices.

Le changement de longueur d'onde est directement lié à la vitesse de la surface réfléchissante. Pour le détecter, on retarde l'un des deux bras de l'interféromètre. Les deux faisceaux n'interfèrent plus à la même longueur d'onde λ , mais à des longueurs d'onde différentes ; l'une à λ et l'autre à $\lambda + \Delta\lambda$. Cette différence de longueur d'onde se manifeste au niveau de la figure d'interférence par un décalage des franges qui peut être mesuré. Le schéma de principe du VISAR est illustré sur la figure (5.16).

Retard introduit par l'étalon : Pour retarder l'un des deux bras de l'interféromètre, on introduit un étalon sur le miroir M_2 . Comme nous pouvons le voir sur la figure (5.17), l'ajout de l'étalon change le chemin optique. On égalise les longueurs optiques des deux bras de l'interféromètre en reculant le miroir M_2 d'une distance d . Celui-ci est monté sur une translation piézo-électrique pour ajuster finement la distance.

Notons e l'épaisseur de l'étalon et n son indice optique. h est la distance entre l'interface étalon-vide et le plan de réflexion en l'absence de l'étalon. La distance d à laquelle celui-ci doit être reculé est donc $d = e - h$. En considérant une incidence quasi-normale, on obtient :

$$d = e \left(1 - \frac{1}{n} \right). \quad (5.51)$$

Le retard entre les deux bras est donné par la différence de chemin optique. En considérant un aller-retour du faisceau sonde dans l'étalon, le retard τ introduit est égal à :

$$\tau = \frac{2nD' - 2D}{c}. \quad (5.52)$$

On peut montrer que pour une incidence quasi-normale, le retard s'écrit :

$$\tau \approx \frac{2n}{c} \left(1 - \frac{1}{n} \right). \quad (5.53)$$

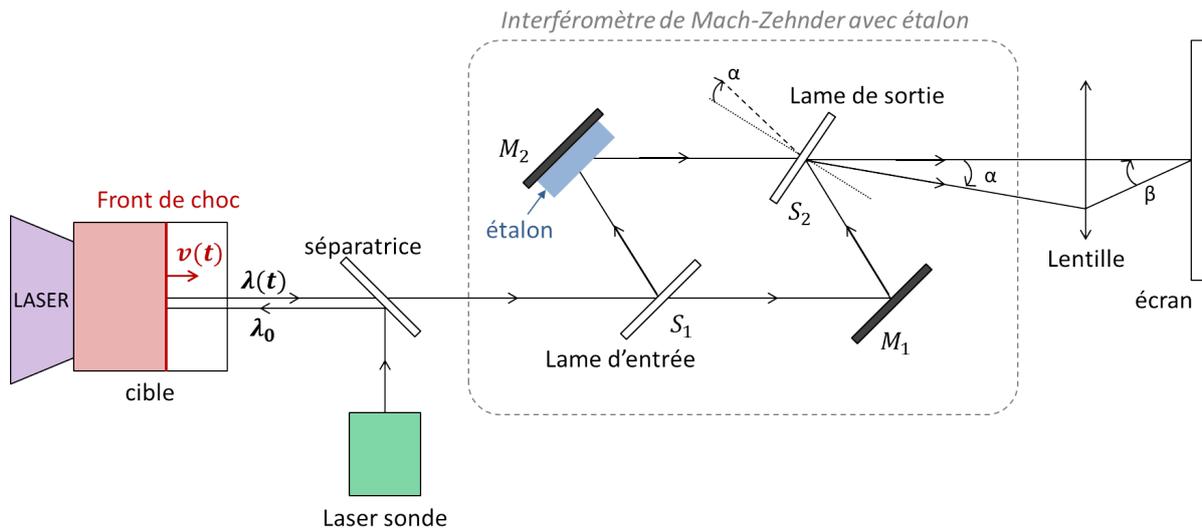


FIGURE 5.16 : Schéma de principe du VISAR.

En calculant le profil d'intensité en sortie de l'interféromètre, on peut montrer que l'ajout de l'étalon a pour effet de provoquer un déphasage du profil d'intensité, sans changer l'interfrange.

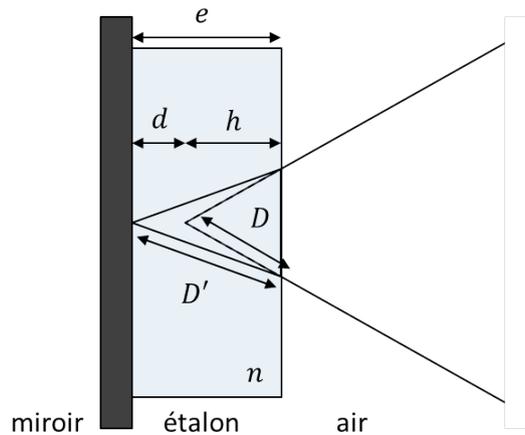


FIGURE 5.17 : Réfraction du faisceau sonde dans l'étalon du VISAR.

Décalage de frange : Considérons le cas le plus simple où la surface réfléchissante se déplace à une vitesse constante. La différence de marche entre les deux bras de l'interféromètre est donc $\delta = 2v\tau$, avec v la vitesse de la surface réfléchissante et τ le retard induit par l'étalon. Cette différence de marche correspond à une différence de phase :

$$\Delta\varphi = \frac{2\pi\delta}{\lambda} \tag{5.54}$$

On exprime alors le décalage de frange F par :

$$F = \frac{\Delta\varphi}{2\pi} = \frac{2\tau v}{\lambda}. \quad (5.55)$$

Celui-ci vaut 1 lorsque $\Delta\varphi = 2\pi$ (une frange entière).

Dispersion dans l'étalon : Jusqu'à présent, nous avons considéré l'indice de l'étalon n comme étant constant. Cependant, il varie lui aussi en fonction de la longueur d'onde [141]. Pour des vitesses de l'ordre du km/s, le changement de longueur d'onde est relativement petit, et on considère que l'indice de réfraction varie linéairement. On l'écrit alors sous la forme :

$$n(\lambda) = n_0 + \frac{dn}{d\lambda} (\lambda(t) - \lambda_0). \quad (5.56)$$

Ainsi, en faisant l'hypothèse non-relativiste ($v(t) \ll c$) et en introduisant la notation de L. Barker [140, 141], δ , on obtient une nouvelle expression du retard :

$$\tau \approx \tau_0 + 2\tau_0 \frac{v(t)}{c} \delta, \quad (5.57)$$

avec

$$\delta = -\lambda_0 \frac{n_0}{n_0^2 - 1} \frac{dn}{d\lambda}, \quad (5.58)$$

et

$$\tau_0 = \frac{2e}{c} \left(n_0 - \frac{1}{n_0} \right). \quad (5.59)$$

Dans nos expériences, nous avons utilisé des étalons en silice fondu et en verre borosilicate, plus connu par son appellation commerciale BK7. Les caractéristiques optiques de ces deux étalons sont indiquées dans les tableaux (5.1) et (5.2).

λ_0 [nm]	n_0	$\frac{dn}{d\lambda}$ [μm^{-1}]	δ
532	1,46071	-0,0436	0,0315
1064	1,44963	-0,012	0,0168

TABLE 5.1 : Caractéristiques optiques de la silice fondue.

λ_0 [nm]	n_0	$\frac{dn}{d\lambda}$ [μm^{-1}]	δ
532	1,5195	-0,05538	0,0342
1064	1,5066	-0,01317	0,01662

TABLE 5.2 : Caractéristiques optiques du BK7.

En prenant en compte la dispersion spectrale dans l'étalon, on écrit le déplacement en nombre de franges par :

$$F(t) = \frac{2(1 + \delta)\tau_0 v(t)}{\lambda_0} \tag{5.60}$$

La vitesse de la surface réfléchissante se manifeste ainsi au niveau de l'interférogramme par un saut de frange. Ce saut peut alors être relié à la vitesse par la relation (5.60) qui fait intervenir δ et τ_0 des grandeurs caractéristiques de l'étalon utilisé pour introduire le retard.

Sensibilité du VISAR : De manière pratique pour les expériences, on définit la sensibilité du VISAR S , en km/s/frange, par :

$$S = \frac{\lambda_0}{2\tau_0(\delta + 1)} \tag{5.61}$$

La vitesse de la surface réfléchissante s'exprime alors comme :

$$v_{\text{mesurée}}(t) = F(t) \cdot S \tag{5.62}$$

Nature de la surface réfléchissante : Si le choc se propage dans un milieu transparent d'indice de réfraction n_0 (figure 5.18) alors les deux chemins optiques correspondant aux bras 1 et 2 du VISAR, notés respectivement L_1 et L_2 , varient et deviennent :

$$L_1 = 2 [L + n_0 (L' - v_{\text{réelle}}(t) \cdot t)] \tag{5.63}$$

$$L_2 = 2 [L + n_0 L'] \tag{5.64}$$

Il faut donc tenir compte de l'indice du matériau traversé par le choc. Ainsi, en comparaison de l'équation (5.62) on obtient :

$$v_{\text{réelle}}(t) = \frac{v_{\text{mesurée}}(t)}{n_0} = \frac{F(t) \cdot S}{n_0} \tag{5.65}$$

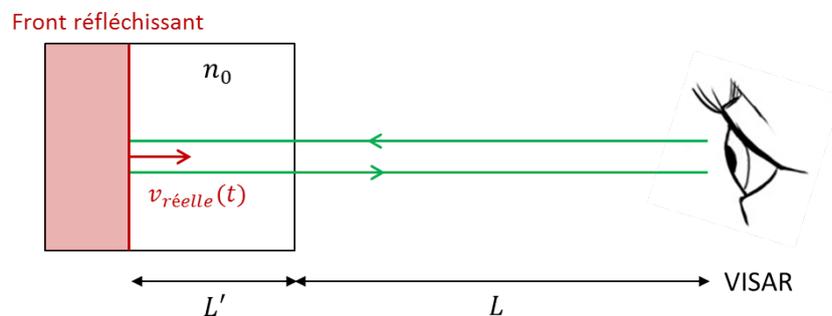


FIGURE 5.18 : Influence de l'indice de réfraction du milieu traversé sur la mesure de la vitesse du front de choc réfléchissant.

Conclusions :

La mesure de la vitesse de choc se fait à l'aide du diagnostic VISAR. Un faisceau sonde se réfléchit sur le front de choc qui se propage dans le matériau d'étude. Ce faisceau voit alors sa longueur d'onde changer par effet Doppler. Il est ensuite injecté dans un interféromètre VISAR. Le décalage spectral est linéaire avec la phase de la figure de franges d'interférences. On mesure la vitesse du choc à partir du décalage des franges en sortie du VISAR.

5.5.1.2 Détermination de la vitesse de choc

Mesure du décalage de frange : Nous venons de voir que la vitesse du front de choc est mesurée à partir du décalage de frange F de la figure d'interférence en sortie du VISAR. Il n'est cependant pas possible de le mesurer directement.

Supposons le cas illustré sur la figure (5.19). On génère une onde de choc qui se propage à vitesse $v(t)$ dans une cible plane composée des trois matériaux : une couche de plastique en face avant, suivi d'une couche d'aluminium, puis de quartz. Dans la situation présentée en (a), le choc se trouve dans l'aluminium. Un faisceau sonde d'une longueur d'onde λ_0 dans le visible est envoyé en face arrière de la cible. Il traverse la couche de quartz, se réfléchit à l'interface avec l'aluminium qui est opaque, puis est envoyé vers le VISAR. La figure d'interférence à un instant donné t_1 est caractérisée par une série de franges verticales. La surface réfléchissante est alors immobile, il n'y a pas de décalage de franges. Dans la situation présentée en (b), le choc a débouché dans le quartz et se déplace à la vitesse $v(t)$. On suppose que celui-ci est suffisamment fort pour métalliser le quartz. Le faisceau sonde se réfléchit alors sur le front de choc. La figure d'interférence à un instant $t_2 > t_1$ est décalée d'un nombre de frange $F = F_1 + f_1$, où F_1 est un nombre entier et f_1 une fraction de frange.

On ne peut mesurer directement que le décalage f_1 entre deux franges successives. Pour avoir accès au nombre de franges entières F_1 décalées en plus de f_1 , on utilise deux VISAR de sensibilités S_1 et S_2 différentes. Nous avons alors :

$$v(t_2) = (F_1 + f_1) \cdot S_1, \quad (5.66)$$

et

$$v(t_2) = (F_2 + f_2) \cdot S_2, \quad (5.67)$$

Les sensibilités S_1 et S_2 sont connues, f_1 et f_2 sont mesurés, il ne reste plus qu'à trouver par essais successifs les valeurs de F_1 et F_2 pour que la vitesse trouvée soit la même pour les deux VISAR.

Enregistrement de la figure d'interférence : Lors de nos campagnes expérimentales, nous avons imagé la figure d'interférence en sortie des VISAR à l'aide d'un système optique sur la fente d'une

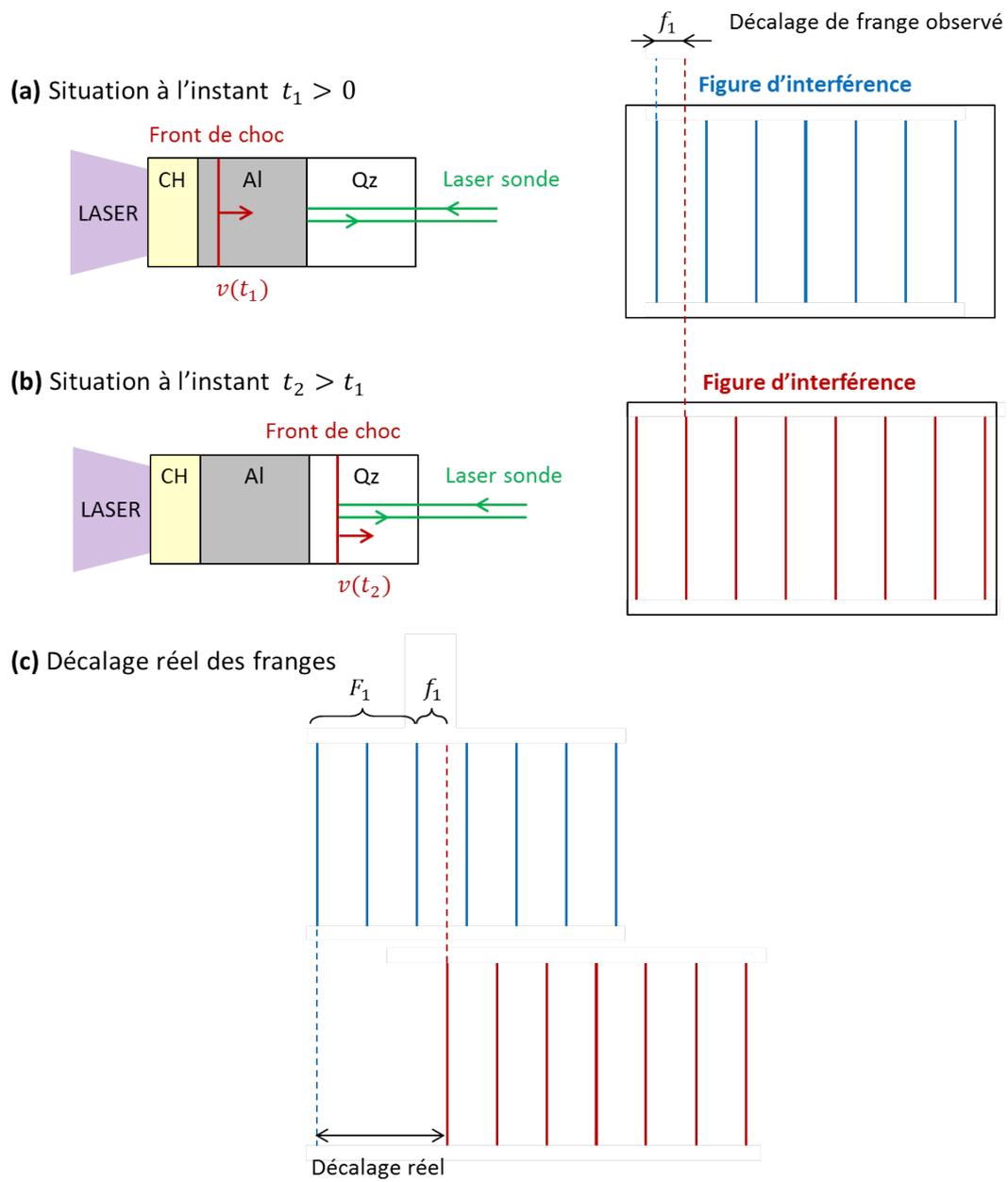


FIGURE 5.19 : Figure d'interférence en sortie du VISAR à deux instants donnés dans le cas où le front de choc se propage dans la cible à la vitesse $v(t)$.

caméra streak couplée à une caméra CCD. On prélève alors une coupe horizontale de la figure d'interférence, généralement en son centre, puis on la fait varier au cours du temps de façon à observer le front de choc évoluer dans le matériau d'étude. En général, on réalise des acquisitions sur une fenêtre temporelle de 5 et 10 ns.

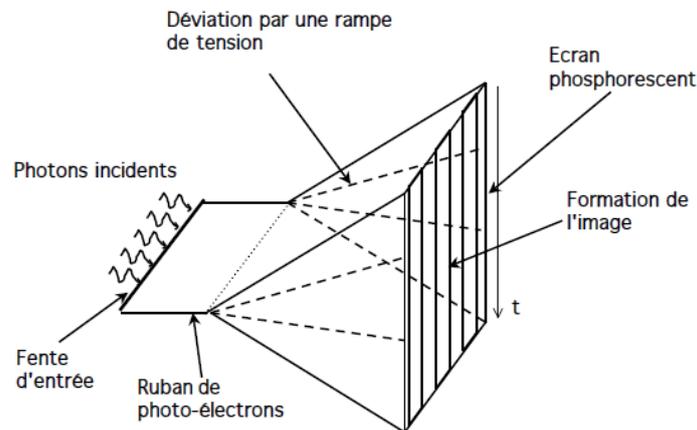


FIGURE 5.20 : Schéma de principe du fonctionnement d'un caméra streak issu de [118].

Le principe de fonctionnement d'un caméra streak est présenté sur le figure (5.20). Elle est munie d'une photocathode qui convertit les photons incidents en photoélectrons. Ceux-ci sont alors déviés au cours du temps par une rampe de tension et vont bombarder un écran fluorescent où se forme l'image. La caméra CCD est placée derrière cette écran pour enregistrer le nombre de coups lié à l'intensité lumineuse du faisceau incident.

La figure (5.21) présente une image VISAR type des expériences que nous avons réalisées. La cible tirée est identique à celle illustrée sur la figure (5.19). Le faisceau sonde possède une longueur d'onde dans le visible à 532 nm. Grâce à la caméra à balayage de fente, nous pouvons suivre l'évolution du front de choc dans le quartz. On remarque très clairement le débouché du choc dans le quartz après 3,5 ns, puis dans le vide après 7,6 ns. De cette façon, le diagnostic VISAR nous permet de calculer des temps de transit dans les matériaux transparents. Connaissant l'épaisseur de la couche traversée, on obtient ainsi la vitesse moyenne de propagation du front de choc. L'utilisation d'un deuxième VISAR de sensibilité différente nous donne ensuite accès à la vitesse instantanée du choc. Celle-ci n'est pas constante et décroît dans le quartz, comme présenté sur la figure (5.21).

Analyse des images VISAR : L'analyse des images VISAR est réalisée à l'aide du logiciel open-source Neutrino³ développé par T. Vinci. La phase est alors extraite du signal à partir d'une méthode

3. Le logiciel Neutrino peut être téléchargé sur l'adresse : <http://web.luli.polytechnique.fr/Neutrino/>.

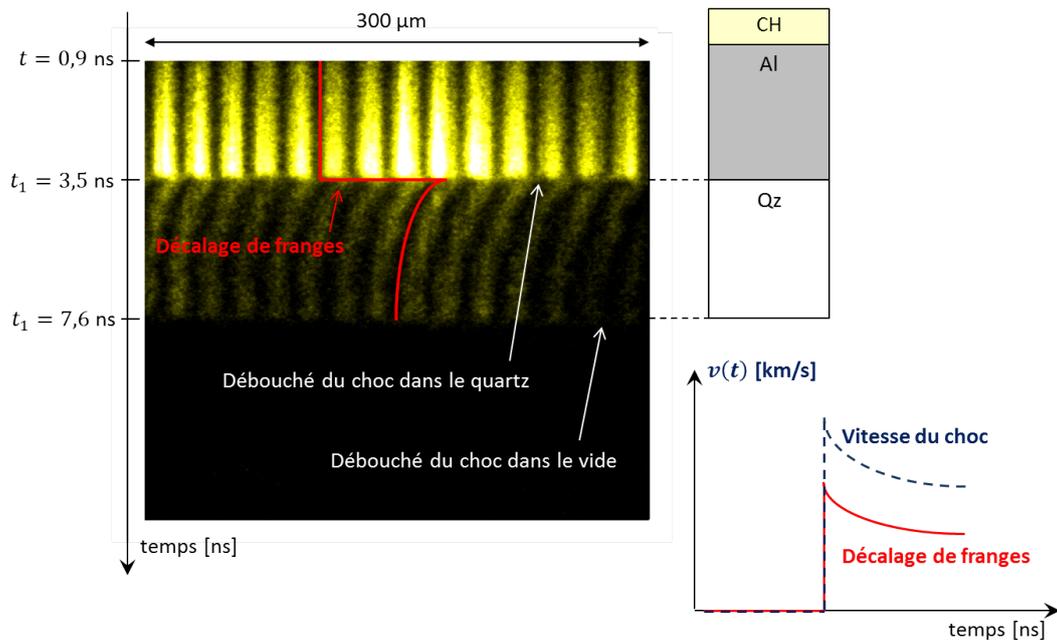


FIGURE 5.21 : Image VISAR typique.

par transformée de Fourier. Une image de référence collectée quelques secondes avant le tir est nécessaire. Elle permet de quantifier la distorsion de l'image VISAR liée à la caméra à balayage de fente. Cette distorsion se manifeste par un déphasage spatial ainsi que par un élargissement ou une réduction de la taille des franges. Il est alors essentiel de soustraire du signal analysé pour obtenir la phase et mesurer la vitesse du front de choc réfléchissant.

Conclusions :

On utilise une caméra à balayage de fente pour obtenir l'évolution temporelle de la figure d'interférence. Les images VISAR se présentent ainsi sous la forme d'un interférogramme. L'analyse se fait à l'aide du logiciel Neutrino. L'évolution temporelle du front de choc permet d'obtenir les temps de propagation et de déterminer les vitesses moyennes du choc dans le matériau transparent. Deux VISAR de sensibilités différentes sont utilisés pour mesurer de décalage de frange et accéder à une vitesse instantanée du front de choc.

5.5.1.3 Détermination de la réflectivité

Les diagnostics VISAR nous permettent également de mesurer la réflectivité de la surface réfléchissante étudiée en se basant sur la luminosité des franges au cours du temps.

Pour chaque cible, on effectue une acquisition avant, puis pendant le tir avec le laser de puissance. La première sert de référence pour connaître la forme temporelle et spatiale du faisceau sonde. La

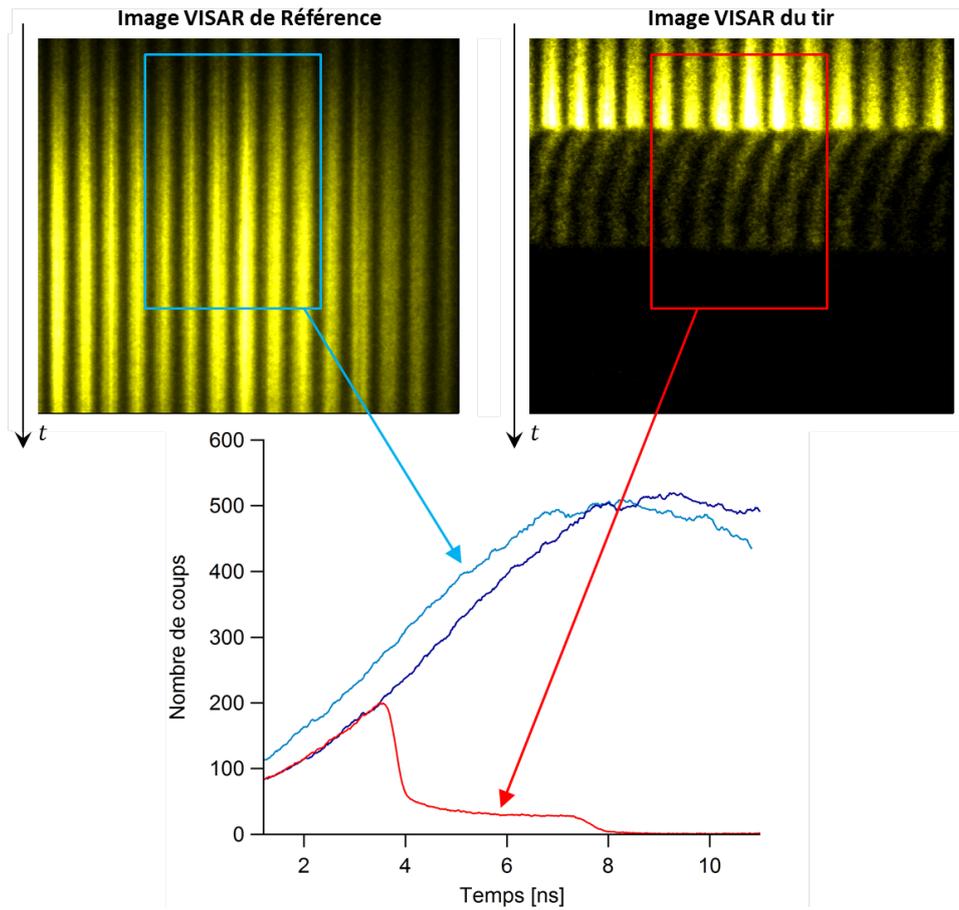


FIGURE 5.22 : En haut, deux images VISAR obtenue avec une cible CH-Al-Qz. L'image de gauche correspond à une acquisition de référence effectuée avant le tir. L'image de droite a été obtenue pendant le tir. On voit le choc se propager dans le quartz. En bas, un graphique représente l'évolution temporelle des intensités moyennées dans les deux rectangles.

seconde contient les données du matériau étudié sous choc. On moyenne ensuite l'intensité lumineuse de l'image VISAR dans un rectangle recouvrant plusieurs franges, ce qui nous permet d'obtenir l'évolution temporelle du nombre de coups collecté sur la caméra CCD.

Notons que la composante quasi-continue due au bruit doit être retirée du signal. Celle-ci est mesurée dans la partie la plus sombre des images VISAR. Les valeurs sont généralement de l'ordre de ≈ 200 coups. De plus, le signal issu du laser sonde n'a pas toujours le même profil spatio-temporel d'un tir à l'autre. Dans ce cas, on ajuste le signal de référence par translation verticale et/ou horizontale jusqu'à ce qu'il coïncide avec le signal du tir avant le débouché du choc dans le matériau transparent.

La figure (5.22) est un exemple pour la cible composée de plastique, d'aluminium et de quartz précédemment introduite. Sur l'image de référence, le faisceau sonde se réfléchit sur l'interface Al/Qz qui est fixe. Les franges n'évoluent pas au cours du temps, elles sont rectilignes. Sur l'image du tir,

on remarque une diminution de l'intensité lumineuse des franges lorsque le choc se propage dans le quartz. Le graphique indique le nombre de coups sur la caméra CCD moyenné spatialement dans les deux rectangles bleu et rouge. Pour les raisons précédemment évoquées, l'intensité de référence en bleu clair ne correspond pas à l'intensité du tir avant le débouché du tir dans le quartz, c'est-à-dire pour des temps inférieurs à ≈ 4 ns dans cet exemple. Le signal de référence a ensuite été corrigé comme indiqué par la courbe bleu foncé.

À partir de ces deux profils d'intensité, on détermine une réflectivité relative en mesurant le rapport du signal du tir I_{tir} sur le signal de référence $I_{\text{réf.}}$:

$$R_{\text{relative}}(t) = \frac{I_{\text{tir}}(t)}{I_{\text{réf.}}(t)}. \quad (5.68)$$

Celle-ci vaut 1 tant que la cible n'est pas perturbée par le choc.

La réflectivité relative doit ensuite être calibrée sur un signal dont on connaît la réflectivité absolue. Dans le cas des cibles utilisées dans cet exemple, on utilise la réflectivité initiale de la cible non perturbée. La réflectivité réelle du front de choc se déplaçant dans le quartz s'écrit alors comme :

$$R_{\text{réelle}}(t) = R_{\text{initiale}} \times R_{\text{relative}}(t). \quad (5.69)$$

La réflectivité initiale peut être mesurée au préalable ou bien calculée. Connaissant les indices optiques de chacun des matériaux de la cible, nous l'avons calculée. Il faut alors tenir compte des pertes dues aux réflexions de Fresnel aux différentes interfaces, comme illustré sur la figure (5.23). En se limitant à l'ordre 2, la réflectivité s'exprime comme :

$$R_{\text{initiale}} = \frac{I_{\text{réfléchié}}}{I_{\text{incidente}}} = R_{\text{Al/Qz}} + (1 - R_{\text{Qz/vidé}})^2. \quad (5.70)$$

Les réflectivités $R_{\text{Qz/vidé}}$ et $R_{\text{Al/Qz}}$ sont calculées à l'aide de la relation (5.71). En considérant deux matériaux d'indices complexes $\tilde{n}_1 = n_1 + i.k_1$ et $\tilde{n}_2 = n_2 + i.k_2$, on exprime la réflectivité à l'interface comme :

$$R = \frac{(n_1 - n_2)^2 + (k_1 - k_2)^2}{(n_1 + n_2)^2 + (k_1 + k_2)^2}. \quad (5.71)$$

La figure (5.24) présente la réflectivité mesurée à 532 nm dans notre exemple. On remarque qu'elle décroît au cours du temps, ce qui est cohérent avec la diminution de la vitesse du front de choc déjà évoquée. Dans le cas du quartz, on suppose que le milieu n'est pas absorbant. Les valeurs mesurées correspondent donc à la réflectivité réelle du front de choc à l'interface entre la matière comprimée et non comprimée. Nous verrons dans le chapitre suivant que cette hypothèse ne s'applique pas aux deux plastiques étudiés. Nous utiliserons alors le quartz pour calibrer les intensités collectées sur les images VISAR. Pour cela nous avons besoin de connaître l'évolution de la réflectivité sous choc en fonction de la vitesse de choc aux longueurs d'onde des faisceaux sondes utilisés (532 nm et 1064 nm).

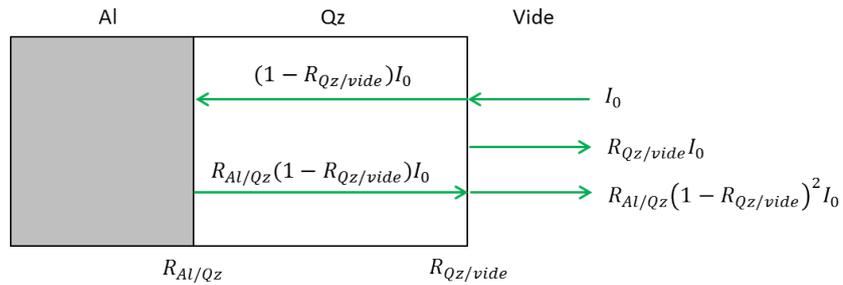


FIGURE 5.23 : Réflexions de Fresnel du faisceau sonde au cours de son aller-retour dans la cible non choquée.

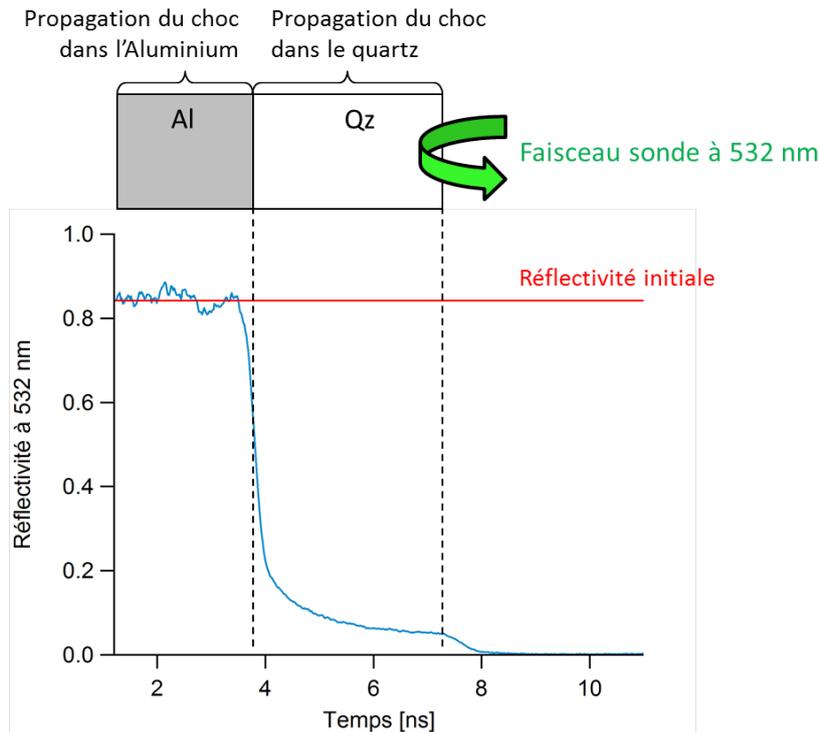


FIGURE 5.24 : Mesure de la réflectivité dans le quartz à 532 nm. Le trait rouge correspond à la réflectivité miroir dans la cible non choquée. La courbe bleue est la réflectivité mesurée du choc évoluant dans le quartz.

Application au quartz : calcul de $R(U_s)$

Le quartz est l'un des matériaux de référence utilisés dans nos expériences. Depuis la dernière décennie, il a fait l'objet de nombreuses études expérimentales. Des chocs ont été générés dans ce matériau sur des installations laser [128], ainsi que sur la machine Z [142], et par des explosions nucléaires souterraines [122]. Son Hugoniot principale a été mesurée avec une grande précision. La réflectivité à 532 nm du quartz choqué et sa température ont ensuite été calibrées en fonction de la vitesse de choc [128]. À partir de celles-ci, nous pouvons déduire la réflectivité du quartz et sa température sous choc en mesurant uniquement la vitesse de choc.

De la même façon, nous avons mesuré la réflectivité du quartz le long de l'Hugoniot. Ces mesures ont été réalisées par notre équipe sur l'installation laser GEKKO XII. Les résultats ont été publiés dans la référence [100]. Des cibles similaires à celles décrites précédemment ont été utilisées. Elles se composent d'une couche de 15 μm de polystyrène qui sert d'ablateur, suivie d'une couche de 40 μm d'aluminium, puis de 50 μm de quartz. Nous avons utilisé des quartz produit par « Asphera Incorporated » de dimension 2 mm \times 2 mm avec un traitement anti-reflet pour les longueurs d'onde 532 et 1064 nm. L'aluminium a été collé sur le quartz. L'épaisseur de la colle est estimée à $\approx 1 \mu\text{m}$.

Neuf tirs ont été réalisés sur ces cibles. Chaque tir a généré un choc décroissant dans le quartz. Les évolutions temporelles de la vitesse de choc et de la réflectivité ont été mesurées au moyen de deux diagnostics VISAR, l'un utilisant un faisceau sonde à 532 nm, l'autre à 1064 nm. Les méthodes présentées dans la partie précédente ont alors été utilisées.

Connaissant la vitesse de choc et les réflectivités aux mêmes instants, on obtient une relation $R = f(U_s)$. L'analyse des données a ainsi produit des nuages de points de réflectivité à 532 et 1064 nm pour des vitesses de choc comprises entre 10 et 17 km/s, comme présenté sur la figure (5.25). Les valeurs mesurées à 532 nm sont légèrement supérieures à celles obtenues sur l'installation laser Oméga par Hicks et al. [130]. Elle sont cependant en meilleur accord avec d'autres données publiées dans le « Supplemental Materials » d'un article de Celliers et al. [143]. Nous utiliserons nos valeurs pour les mesures d'équation d'état des plastiques.

Une fonction de Hill a ensuite été ajustée sur nos valeurs :

$$R(U_s) = R_0 + (R_{\max} - R_0) \frac{U_s^n}{U_s^n + D^n} \quad (5.72)$$

Les coefficients R_0 , n , et D sont des paramètres libres, R_{\max} a été imposée. Pour la longueur d'onde 532 nm, nous avons utilisé la valeur de saturation des expériences Oméga. Pour la longueur d'onde 1064 nm, nous avons imposé une valeur qui a été récemment estimée par Qi et al. [144] à partir de simulations de dynamique moléculaire quantique. Les coefficients de la fonction de Hill calculée à ces deux longueurs d'onde sont indiqués dans le tableau (5.3).

λ_0 [nm]	R_{\max}	R_0	n	D [km/s]
532	0,32	0,00765	9,9765	15,103
1064	0,4	0,050053	11,329	14,207

TABLE 5.3 : Coefficients de la fonction de Hill ajustés sur les réflectivités mesurées à 532 nm et à 1064 nm.

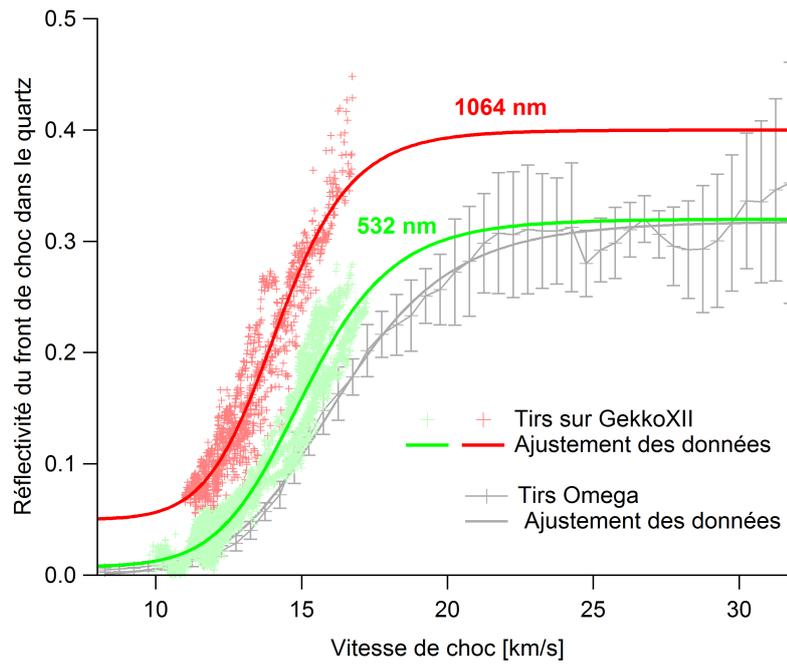


FIGURE 5.25 : Réflectivité du quartz en fonction de la vitesse de choc pour une longueur d'onde du faisceau sonde à 532 nm (en vert) et à 1064 nm (en rouge).

Conclusions :

Nous avons mesuré la réflectivité du quartz en fonction de la vitesse de choc. Ces valeurs serviront pour calibrer les images VISAR dans nos expériences à partir desquelles nous mesurerons la réflectivité sous choc dans les plastiques.

5.5.2 Diagnostic passif : mesure de l'émission propre

La mesure de la température est un point important pour les équations d'état des matériaux ablateur des capsules du LMJ. Comme nous l'avons déjà souligné, cette grandeur ne peut pas être déduite des relations de Rankine-Hugoniot. Nous mesurerons donc la température par pyrométrie en même temps que les vitesses de choc à l'aide d'un diagnostic d'émission propre utilisé en parallèle des deux diagnostics VISAR.

5.5.2.1 Principe

Une onde de choc chauffe la matière en la traversant. Cette augmentation soudaine de température s'accompagne d'une émission de rayonnement au niveau du front de choc [116]. Nous mesurerons la luminosité en face arrière de la cible au cours du temps à l'aide d'un diagnostic SOP pour Streak-Optical-Pyrometer. Ce diagnostic se compose d'un système optique qui relie l'image de la face arrière

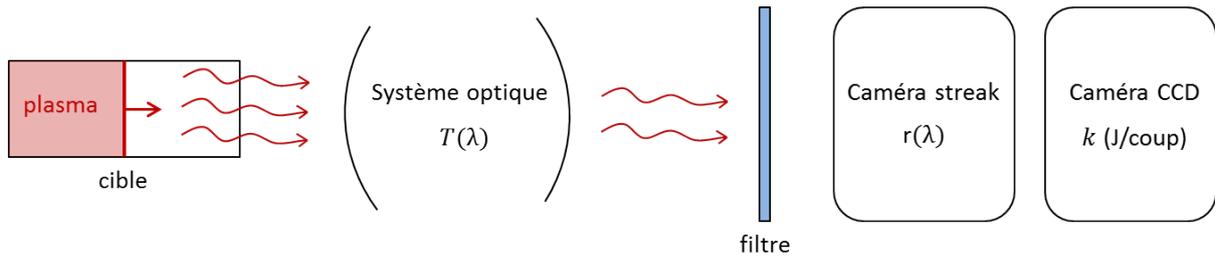


FIGURE 5.26 : Schéma de principe de la mesure de l'émission propre.

de la cible à une caméra à balayage de fente, comme présenté sur la figure (5.26). La température doit néanmoins être suffisamment élevée pour que l'émission soit détectable par le système d'imagerie. Elle est typiquement de 5 000 K [145].

En prenant l'hypothèse de corps noir ou de corps gris, on relie la température du plasma à la lumière émise à partir de la loi de Planck. La densité spectrale de luminance émise par la cible $I(\lambda, T)$ s'écrit en $\text{W} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{sr}^{-1} \cdot \text{nm}^{-1}$ comme :

$$I(\lambda, T) = e(\lambda) \frac{2hc^2}{\lambda^5} \frac{1}{e^{\frac{hc}{\lambda k_B T}} - 1}, \quad (5.73)$$

où le facteur $e(\lambda)$ est l'émissivité à la longueur d'onde λ . Pour un corps noir, on a $e(\lambda) = 1$. Pour améliorer cette hypothèse, on définit la température équivalente du corps gris pour les matériaux transparents grâce à la mesure de la réflectivité $R(\lambda)$. Dans ce cas, l'émissivité n'est pas égale à 1 et est donnée par la loi de Kirchhoff : $e(\lambda) = 1 - R(\lambda)$.

À température égale, le nombre de photons émis par un corps gris est donc plus faible que celui d'un corps noir. En conséquence, pour un même nombre de photons détectés sur le diagnostic, nous mesurerons une température de corps gris supérieure à celle du corps noir.

Pour estimer le spectre d'émission, nous avons mesuré l'émission à une longueur d'onde unique et déterminé une température de brillance. Il est alors nécessaire de connaître le nombre absolu de photons émis par le plasma, ce qui implique un calibrage de tout le système de détection.

Considérons le dispositif expérimental présenté sur la figure (5.26). Un filtre est ajouté devant la caméra à balayage de fente pour sélectionner une petite bande spectrale $\Delta\lambda$ dans le visible. On utilise généralement un spectre bleu centré sur la longueur d'onde $\lambda_0 = 454 \text{ nm}$. En notant $T(\lambda)$ la réponse spectrale du système optique qui assure le relais d'image, $r(\lambda)$ la réponse spectrale de la photocathode, et k (en J/coup) la réponse en énergie du système constitué des caméras streak et CCD, on exprime le nombre de coups N collecté sur un pixel de la caméra à balayage de fente par :

$$N = \frac{S \cdot \Omega \cdot \Delta t}{k} \int_{\Delta\lambda} I(\lambda, T) T(\lambda) r(\lambda) d\lambda. \quad (5.74)$$

S est la surface émettrice illuminant un pixel sur la caméra CCD. Cette surface est donnée par le grandissement de la chaîne de mesure qui est composée du système optique de relais d'image et de la streak. Ω est l'angle solide de collection des photons, et Δt le temps d'exposition d'un pixel.

La bande spectrale étant étroite, de largeur $\Delta\lambda$ centrée sur λ_0 , la dépendance en longueur d'onde de la SOP est bien approximée par une distribution de Dirac δ . On exprime alors la température de couleur en fonction du nombre de coups N sur la caméra CCD par [146] :

$$T = \frac{T_0}{\ln\left(1 + \frac{A(1-R)}{N}\right)}. \quad (5.75)$$

Les coefficients T_0 et A sont les constantes de calibrations du diagnostic définies par :

$$T_0 = \frac{hc}{\lambda_0 k_B} \quad (5.76)$$

et

$$A = \frac{2hc^2}{\lambda_0^5} \langle T \times r \rangle_{\Delta\lambda} \cdot \Delta\lambda \cdot \Omega \cdot S \cdot \Delta t \cdot \frac{1}{k(\Delta\lambda)}, \quad (5.77)$$

où $\langle T \times r \rangle_{\Delta\lambda}$ est la moyenne du produit de la transmission par la fonction de réponse de la photocathode, h est la constante de Planck⁴, et c la vitesse de la lumière⁵.

La mesure absolue des constantes de calibration nécessite de connaître précisément les caractéristiques de transmission de toutes les optiques mais également de la caméra utilisée. Deux méthodes sont généralement utilisées pour calibrer la SOP. On peut soit calibrer le système à l'aide d'une lampe spectrale dont la température est bien connue, soit utiliser un matériau de référence dont l'émissivité est bien calibrée en température.

5.5.2.2 Calibration absolue

Sur l'installation GEKKO XII, une calibration absolue du dispositif de mesure a été effectuée en amont de nos expériences par l'équipe de N. Osaki.

- La réponse spectrale du système optique avec et sans la caméra streak ont été mesurées en plaçant une lampe spectrale en centre chambre. On obtient ainsi la courbe $T(\lambda) \cdot r(\lambda)$ qui peut être moyennée sur la largeur spectrale pour déterminer $\langle T \times r \rangle_{\Delta\lambda}$.
- La calibration en énergie de la streak et de la caméra CCD utilise une impulsion laser à la longueur d'onde ciblée. Elle est ensuite séparée en deux impulsions : l'une est envoyée sur la streak, l'autre sur un microjoulemètre. Connaissant la surface de la fente de la streak et le diamètre du faisceau,

4. $h = 6,62607 \cdot 10^{-34}$ J/s.

5. $c = 299792458$ m/s.

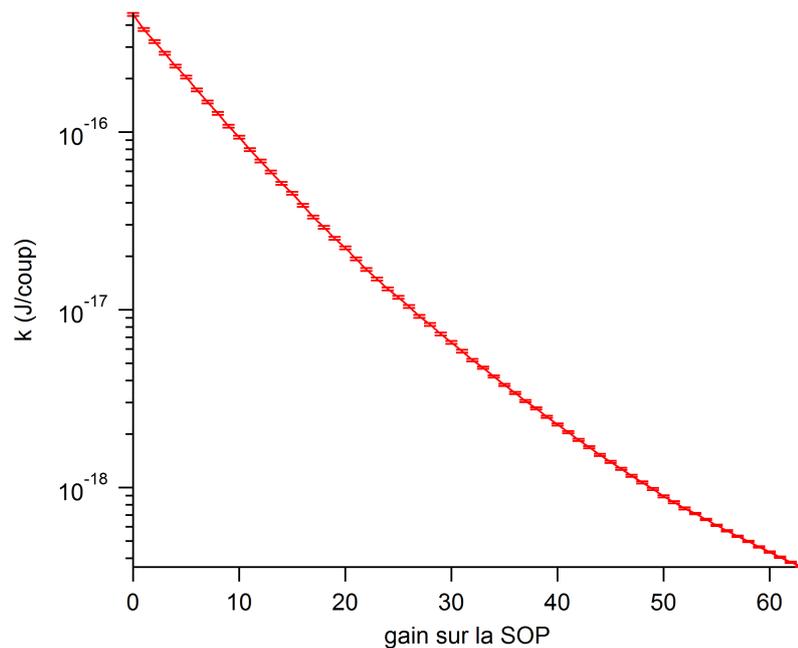


FIGURE 5.27 : Courbe de réponse en énergie des caméras streak et CCD à 454 nm dans la configuration expérimentale utilisée sur l'installation GEKKO XII.

on sait alors combien de photons ont illuminé la fente, et on accède à la constante de calibrage de la streak k . Ce procédé doit être réitéré pour chaque valeur du gain imposée au système de mesure. On obtient ainsi une courbe de k en fonction du gain illustrée sur la figure (5.27). Cette courbe décroît lorsque l'on augmente le gain.

- Le temps d'exposition Δt d'un pixel est défini par la vitesse de balayage de la streak, exprimée en ps/pixels, et par la largeur de la fente Δx en pixels. La première est fournie par les données du constructeur. La seconde est mesurée en faisant l'image statique de la fente sur la caméra CCD, puis en comptant le nombre de pixels.
- La surface émettrice S est calculée à partir du grandissement total de la chaîne de mesure. Celui-ci est déterminé en imageant sur la caméra CCD un objet de taille connue, comme une mire, placée au centre de l'enceinte.
- L'angle solide Ω de collection des photons issus de la surface émissive est défini par l'ouverture de la première lentille à partir de la cible.

Les paramètres mesurés sur l'installation GEKKO XII sont indiqués dans le tableau suivant :

λ_0 [nm]	$\Delta\lambda$ [nm]	S [m ² /pixel ²]	Ω [sr]	Δt [ns]	$\langle T \times r \rangle_{\Delta\lambda}$
454	32,1	$1,52 \cdot 10^{-11}$	0,05686	0,176458	0,0874

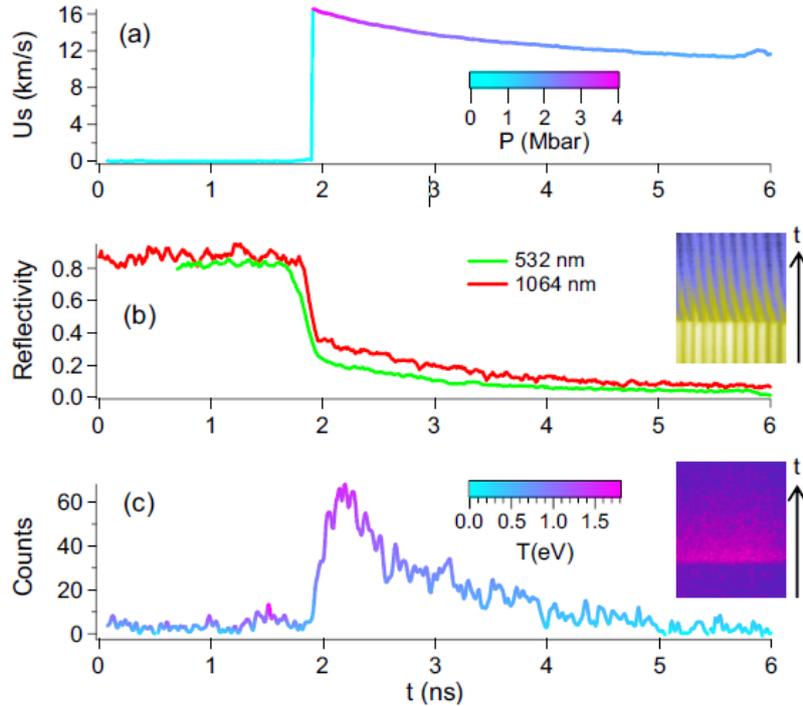


FIGURE 5.28 : Profil temporel de la vitesse de choc en (a), de la réflectivité à 532 nm et 1064 nm en (b), et du nombre de coups collecté sur la SOP en (c) pour un tir sur une cible CH-Al-Qz.

Application au quartz : calcul de $T(U_s)$

Dans la partie 5.5.1.3, nous avons présenté les résultats de neuf tirs réalisés sur l'installation GEKKO XII. Les cibles tirées étaient composées d'une couche de polystyrène, suivi d'aluminium, et de quartz. Nous avons alors calibré la réflectivité sous choc du quartz à 532 nm et à 1064 nm. La courbe de calibration se traduit par une relation de la réflectivité en fonction de la vitesse de choc.

Durant ces mêmes expériences, nous avons utilisé une SOP pour détecter l'émissivité du front de choc dans le quartz. La figure (5.28) présente l'évolution temporelle de la vitesse de choc, des réflectivités et du nombre de coups collecté sur la caméra CCD lors d'un tir. À partir des constantes de couplage mesurées sur cette installation et des valeurs de la réflectivité à 532 nm, nous avons déterminé la température de corps gris du quartz sous choc. On suppose alors que ce matériau n'est pas absorbant, et on obtient pour chaque tir une série de températures décroissantes avec la vitesse de choc. Les valeurs obtenues sont présentées sur la figure (5.29). Elles sont en accord avec les données mesurées sur l'installation laser Oméga par Hicks et al. [130]. Nous avons ensuite ajusté une loi de puissance sur ces

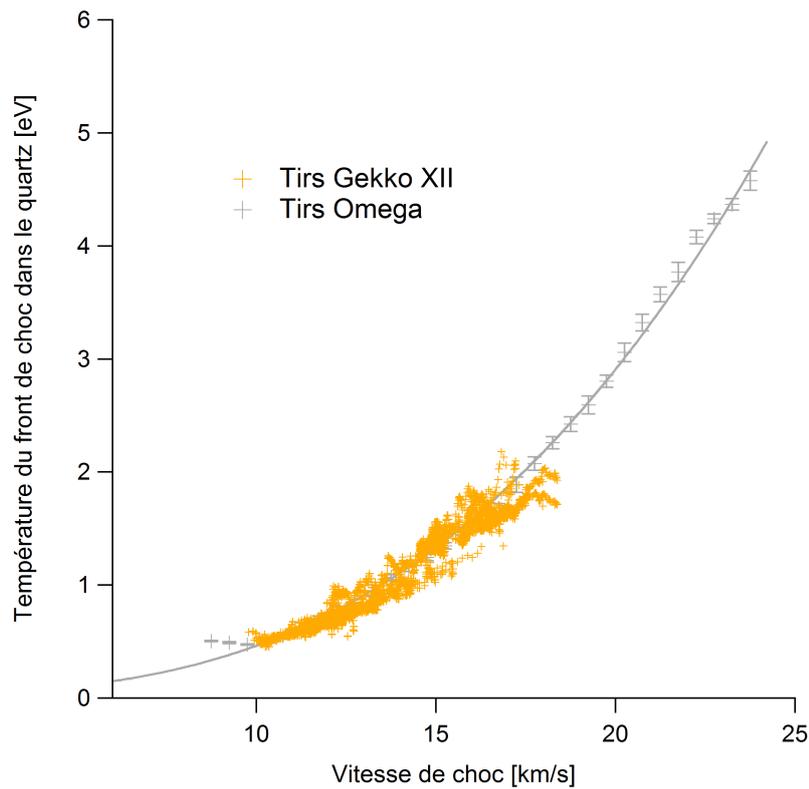


FIGURE 5.29 : Courbes de calibrations de la température du quartz en fonction de la vitesse de choc.

données, de la forme $T(U_s) = \theta_0 + A \cdot U_s^{n_T}$, avec $\theta_0 = -0,073$ eV, $A = 0,00196$ et $n_T = 2,411$.

Conclusions :

Une calibration absolue de la SOP a été réalisée sur l'installation GEKKO XII. À partir de ces données, nous avons mesuré la température sous choc du quartz en fonction de la vitesse de choc.

5.5.2.3 Calibration semi-absolue

Sur l'installation LULI2000, nous avons déterminé les constantes de calibration A et T_0 du diagnostic d'émission propre à l'aide du quartz et des précédentes mesures de la température en fonction de la vitesse de choc. Nous avons alors tiré des cibles identiques à celles déjà utilisées sur l'installation GEKKO XII. De la même façon, nous observons la décroissance de la vitesse de choc, de la réflectivité à 532 nm et du nombre de coups sur la caméra CCD au cours du temps. Connaissant $U_s(t)$ à chaque instant, nous calculons $T(U_s(t))$ et $R(U_s(t))$ du choc évoluant dans le quartz, et traçons la température en fonction du nombre de coups N sur la caméra CCD (figure 5.30). On ajuste ensuite la fonction (5.75)

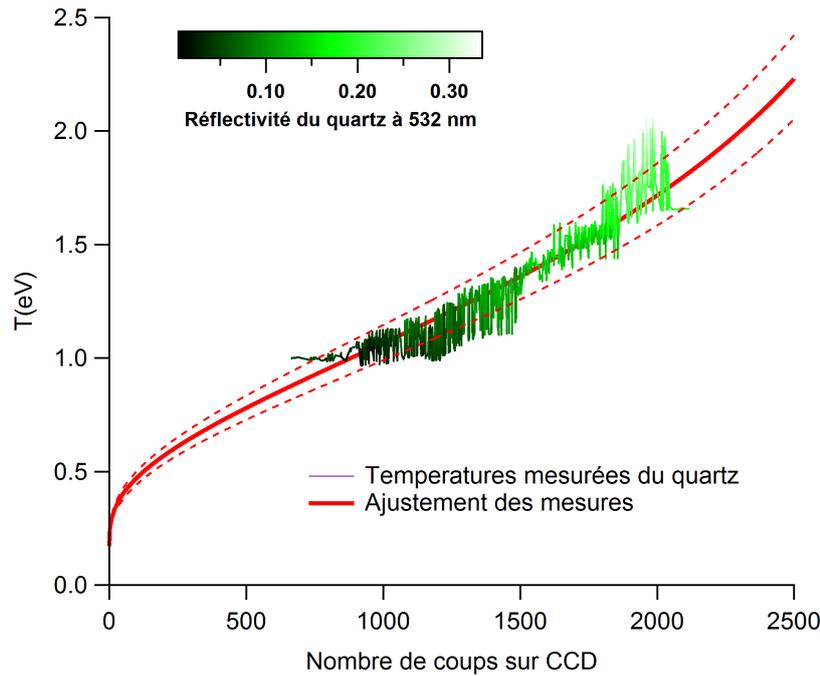


FIGURE 5.30 : Courbes de calibration de la température du quartz en fonction du nombre de coups collecté sur la caméra CCD.

pour déterminer les valeurs des constantes A et T_0 . Cette fonction s'écrit dans le cas présent comme :

$$T(N) = \frac{T_0}{\ln\left(1 + \frac{A(1-R(N))}{N}\right)}. \quad (5.78)$$

Dans cette relation, la réflectivité dépend également du nombre de coups. Elle a été obtenue en interpolant $R(t)$ sur $N(t)$ puis en éliminant t . Nous trouvons les valeurs $T_0 = 1,89 \pm 0,09$ eV et $A = 4833 \pm 240$. Les incertitudes proviennent principalement des fluctuations de la réflectivité du quartz. Ces constantes de calibrations sont déterminées pour une valeur du gain fixée sur la caméra CDD. Il faut donc conserver ce gain lors des expériences.

Conclusion :

Une calibration semi-absolue de la SOP a été réalisée sur l'installation LULI2000. Le quartz a alors été utilisé comme matériau de référence pour restituer les constantes de calibration du système.

5.6 Le dimensionnement des cibles

Contraintes imposées par le dispositif expérimental : Lors des parties précédentes, nous avons présenté les techniques expérimentales employées pour mesurer des pressions, des densités et des températures dans les plastiques sous compression dynamique. Ces méthodes impliquent des contraintes

sur le choix des matériaux à utiliser dans nos cibles ainsi que sur leurs agencements les uns par rapport aux autres et leurs propriétés optiques. En effet, la méthode de la désadaptation d'impédance nécessite de faire précéder le plastique d'un matériau de référence. Il faut ensuite déterminer précisément la vitesse de choc à l'interface entre ces deux matériaux. Dans ce cas, nous devons être capable de suivre l'évolution temporelle du choc et de mesurer sa vitesse de propagation à l'instant précis où celui-ci est transmis du matériau de référence au plastique. Le diagnostic VISAR ne peut mesurer des vitesses de choc instantanées que dans des matériaux transparents à la longueur d'onde du faisceau sonde. Les chocs doivent alors être suffisamment forts pour devenir réfléchissants et que l'émission au niveau du front de choc soit détectable sur la SOP.

De plus, du rayonnement à haute énergie (X durs et électrons supra-thermiques) est produit lors de l'interaction laser-matière. Ce rayonnement pénètre en profondeur dans la cible, est absorbé par les différents matériaux et préchauffe la matière en amont du front de choc. Ce préchauffage modifie l'état initial et par conséquent les états finaux sur l'Hugoniot. Il s'accompagne en général d'une modification des propriétés optiques des matériaux étudiés [147], ce qui peut perturber la mesure VISAR. Dans le pire des cas, on peut observer une perte d'intensité totale empêchant jusqu'à la détection du saut de frange. Pour minimiser la création de rayons X durs, un matériau ablateur de $Z < 10$ est introduit en face avant de la cible. Nous choisirons du polypropylène commercial. Dans certains cas, un bouclier sera ajouté après l'ablateur. Celui-ci se compose d'un matériau de Z élevé de façon à absorber les rayons X produits avant que ceux-ci ne puissent perturber nos mesures.

Matériaux de référence utilisés : Nous avons également mentionné l'utilisation de deux matériaux de référence différents : l'aluminium et le quartz. Historiquement, c'est l'aluminium qui a été introduit comme matériau de référence pour les expériences d'équation d'état. Son Hugoniot a été largement étudiée [148, 122, 149], ce qui en fait un matériau de référence idéal. Il a notamment été utilisé pour des mesures d'équation d'état du saphir (Al_2O_3), du fluorure de lithium (LiF) [150], de la silice fondue [130], ainsi que du quartz [130, 128], du deutérium (D_2) [151], et du plastique bromé [29]. Étant opaque aux longueurs d'onde des faisceaux sondes, nous ne pouvons pas mesurer des vitesses de choc instantanées. On doit alors estimer une vitesse moyenne grâce à la mesure du temps de transit du choc dans une marche d'épaisseur connue. L'épaisseur des marches obéit à un compromis : elle doit être suffisamment petite pour limiter l'amortissement du choc, mais suffisamment importante pour limiter l'erreur sur la mesure du temps de transit.

Pour les matériaux transparents, le quartz s'est ensuite imposé comme référence. Il est transparent, ce qui permet une mesure des vitesses de choc instantanées avec une précision de l'ordre du pourcent. De

plus, il devient réfléchissant pour des vitesses de chocs supérieures à 9 km/s, soit une pression de l'ordre de 1 Mbar, et est utilisé comme référence in-situ pour la mesure de la réflectivité et de la température. Son Hugoniot a été mesurée très précisément au cours de plusieurs campagnes expérimentales [152, 122, 128, 142]. À partir de ces calibrations, des états sur l'Hugoniot de différents matériaux ont été analysés comme par exemple, pour le diamant [153, 131], l'hélium [143, 154] et l'hydrogène [154]. Dans le cas des plastiques, le quartz a été utilisé par N. Osaki sur le polystyrène [155], puis par M. Barrios sur le polystyrène, le polypropylène et les ablateurs de capsules NIF [156, 157]. Dans notre cas, le choix d'un matériau de référence s'est imposé en fonction des propriétés optiques des échantillons de plastiques à analyser.

Caractéristiques des échantillons plastiques : Des photographies des deux matériaux étudiés sont présentées sur la figure (5.31) pour le CHO et sur la figure (5.32) pour le CHOSi. Visuellement, ils sont très différents. Le plastique non dopé est sombre, d'une couleur marron foncé. À l'inverse l'échantillon de plastique dopé au silicium est clair, de couleur légèrement jaunâtre. De plus, le CHO est beaucoup plus absorbant dans le visible que le CHOSi. Son indice de réfraction et d'absorption ont été mesuré par ellipsométrie spectroscopique et spectrophotométrie. Les données obtenues sont reportées dans le tableau (5.5). Elles indiquent un coefficient d'absorption $\alpha \approx 1,5 \cdot 10^{-2} \mu\text{m}^{-1}$ alors que celui-ci est négligeable pour le CHOSi.

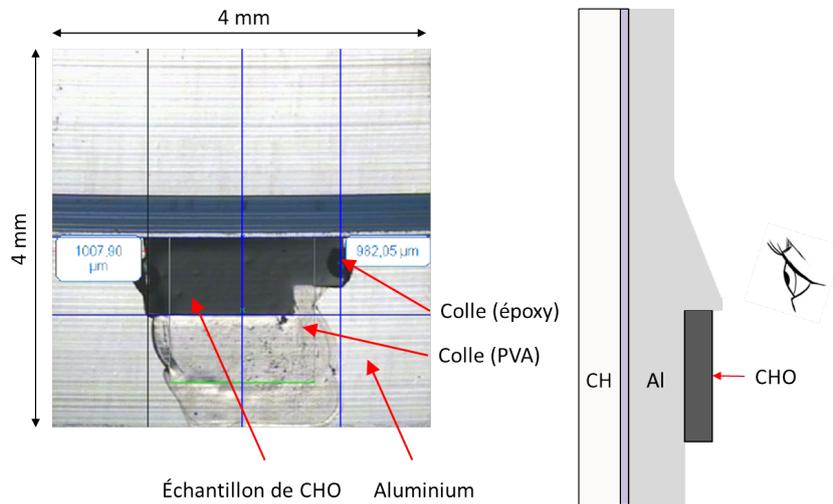


FIGURE 5.31 : Photographie d'une cible utilisée pour le plastique CHO. On remarque que celui-ci est très foncé.

Du fait de cette forte absorption du CHO, nous avons eu des doutes sur notre capacité à employer le quartz comme matériau de référence, l'intensité du faisceau sonde transmis après réflexion sur le front de choc devant être suffisante pour détecter le saut de frange sur les interférogrammes VISAR.

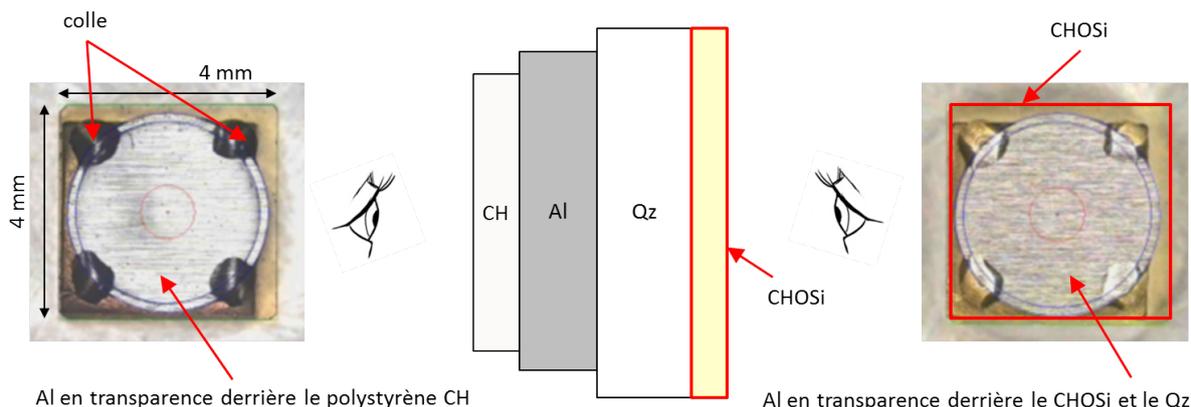


FIGURE 5.32 : Photographie d'une cible utilisée pour le plastique CHOSi : à gauche la vue de la face avant, à droite vue du côté de la face arrière avec le CHOSi. On remarque que le CHOSi est transparent, de couleur jaune pâle.

Nous avons donc choisi une référence aluminium avec un dimensionnement de cible particulier, comme indiqué sur la figure (5.31). Une marche en aluminium a été introduite pour déterminer des vitesses de choc moyennes. Une pente de 400 μm de large sur 50 μm de haut a ensuite été usinée de façon à vérifier la stationnarité du choc et ainsi diminuer les incertitudes sur la mesure des vitesses de choc. En prenant en compte l'absorption dans le plastique et les réflexions de Fresnel, on obtient une transmission de 58% à 532 nm et 89% à 1064 nm après réflexion à l'interface Al/CHO. Nous utiliserons donc un VISAR dans l'infrarouge à $\lambda_0 = 1064$ nm en plus d'un VISAR dans le visible à $\lambda_0 = 532$ nm.

Dans le cas du plastique CHOSi, nous avons utilisé des cibles avec une référence quartz, comme indiqué sur la figure (5.32). La transmission après réflexion à l'interface Al/Qz étant de 84% à 532 nm, l'utilisation d'un VISAR dans l'infrarouge n'est pas critique.

λ	n_0	k_0	α [μm^{-1}]
532 nm	1,564	$5,53 \cdot 10^{-4}$	$1,31 \cdot 10^{-2}$
1064 nm	1,538	$< 10^{-6}$	$< 10^{-5}$

TABLE 5.4 : Constantes optiques du CHO mesurées à 532 nm et à 1064 nm : les parties réelles et imaginaires de l'indice de réfraction n_0 et k_0 , ainsi que le coefficient d'absorption α .

λ	n_0	k_0	α [μm^{-1}]
532 nm	1,5505	$< 10^{-6}$	$< 10^{-5}$

TABLE 5.5 : Constantes optiques du CHOSi mesurées à 532 nm : les parties réelles et imaginaires de l'indice de réfraction n_0 et k_0 , ainsi que le coefficient d'absorption α .

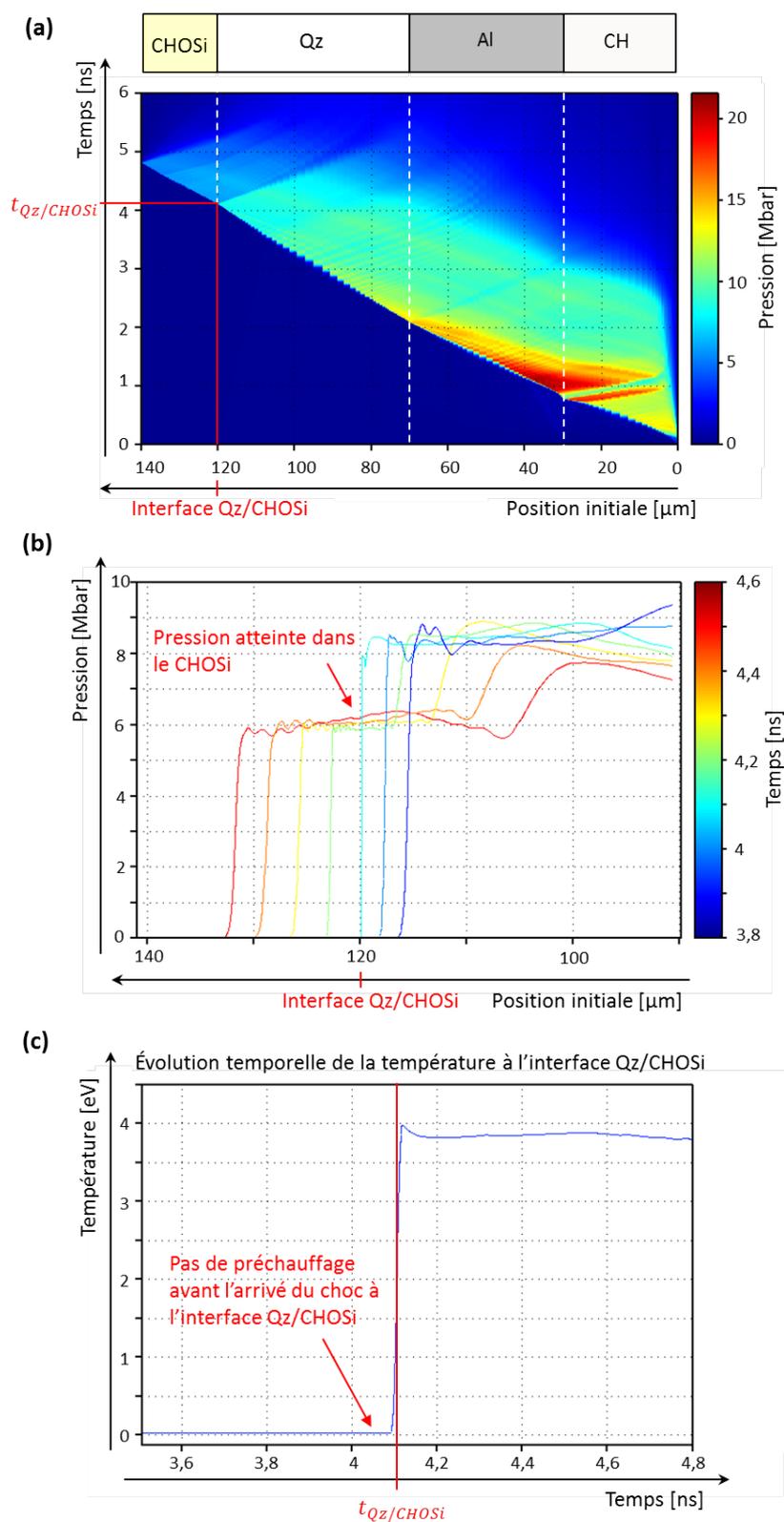


FIGURE 5.33 : Simulation MULTI pour une cible CHOSi dans une configuration GEKKO XII avec 9 faisceaux à 3ω ($E = 900$ J) et 3 faisceaux à 2ω ($E = 600$ J).

Utilisation d'un code hydrodynamique : Le dimensionnement des cibles est réalisé à l'aide d'un code hydrodynamique. Celui-ci décrit l'interaction laser-matière, les transferts énergétiques et l'hydrodynamique, et permet ainsi de simuler la propagation d'un choc dans une cible. L'interaction laser-matière dont les principaux éléments ont été rappelés dans la partie 5.4 détermine la formation du choc et son intensité. Les transferts énergétiques comme la conduction thermique et les transferts radiatifs sont ensuite traités. Cet apport d'énergie modifie le milieu qui est mis en mouvement. Les équations fluides permettent ensuite de modéliser l'écoulement hydrodynamique. Pour plus de réalisme, les propriétés de la matière (équations d'état, opacités et émissivités) sont introduites dans le code par des tables extérieures.

Dans le cadre de cette thèse, nous avons utilisé deux codes hydrodynamiques différents : le code CHIVAS développé au CEA et le code MULTI⁶ [158]. Tous deux sont des codes hydrodynamiques Lagrangiens implicites monodimensionnels (1D) avec transfert de rayonnement. Dans un code lagrangien, l'espace est découpé en mailles dont la taille est variable mais la masse est constante. La discrétisation dépend fortement du maillage initial qui se déforme ensuite au cours du temps. Il faut alors bien choisir le nombre de cellules ainsi que la progression géométrique du maillage.

Ces codes permettent de traiter des cibles multicouches. Chacune d'entre elles est décrite par son épaisseur, le numéro atomique et la masse atomique du matériau qui la compose, ainsi que par le maillage spatial qui lui est associé. Il faut alors raccorder convenablement les différents maillages aux interfaces par conservation de la masse entre la dernière cellule d'une couche et la première cellule de la couche suivante.

L'utilisation d'un code hydrodynamique nous permet d'estimer différents paramètres utiles à nos expériences comme par exemple, le temps de propagation du choc dans chaque couche, le préchauffage à l'interface entre le matériau de référence et le plastique, ou encore les pressions atteintes dans l'échantillon. La conception des cibles consiste alors à réaliser une série de simulations en faisant varier les paramètres de la cible. Dans notre cas, nous avons testé différents boucliers, fait varier les épaisseurs des différentes couches, et changé l'intensité du laser. Nous avons ainsi déterminé quels paramètres permettent d'obtenir des chocs de quelques mégabars dans le plastique sans que celui-ci ne soit préchauffé.

La figure (5.33) présente le résultat d'une simulation 1D avec le code MULTI. La pression évolue au cours de la propagation du choc dans une cible composée d'un plastique CHOSi précédé d'une référence quartz. Les conditions de la simulation correspondent à ce que l'on peut obtenir à pleine puissance sur l'installation GEKKO XII en utilisant les 9 faisceaux à 3ω ($E = 900$ J) et les 3 faisceaux à 2ω ($E = 600$ J). On remarque que le choc a mis $\approx 4,1$ ns pour se propager dans la cible et arriver à l'in-

6. MULTI est un acronyme de : MULTIGroup radiation transport in MULTILayer foils.

terface quartz/CHOSi. Cette estimation nous permet de synchroniser le faisceau sonde du VISAR avec les faisceaux laser et de choisir la bonne vitesse de balayage sur les caméras streak. De plus, on peut estimer les pressions atteintes dans le quartz et le plastique lors de la propagation du choc de l'un vers l'autre (figure 5.33 (b)). Dans cet exemple, on obtient une pression de 6 Mbar environ dans le CHOSi. Enfin, on peut s'assurer qu'il n'y a pas de préchauffage dans le plastique en contact avec le quartz. La figure 5.33 (c) correspond à la température à l'interface entre le quartz et le CHOSi. Le préchauffage provoque une augmentation de la température avant l'arrivée du choc, ce qui n'est pas le cas dans cet exemple.

Les différents tests ont conduit aux cibles présentées sur les figures (5.34) et (5.35). Elles ont ensuite été fabriquées par le laboratoire cible du CEA/Valduc.

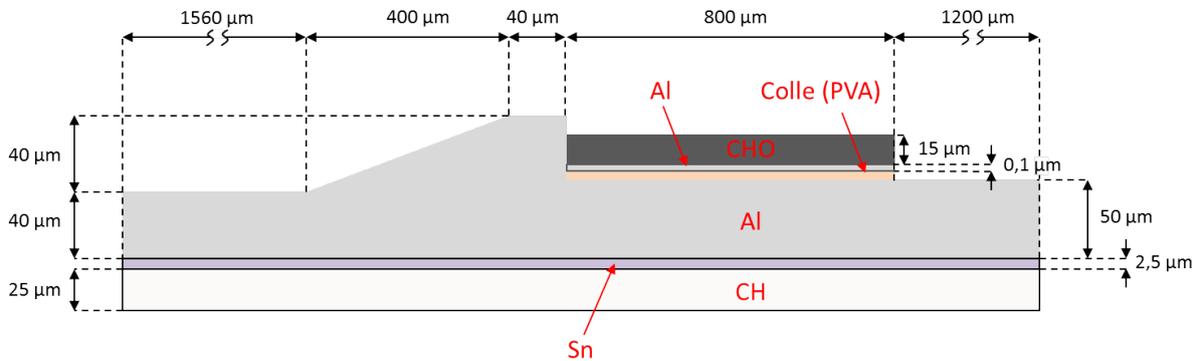


FIGURE 5.34 : Schéma des cibles LULI2000.

Les cibles LULI2000 : Les cibles développées pour le plastique CHO ont été tirées sur l'installation LULI2000 lors d'une campagne expérimentale en 2015. Un seul dimensionnement a été utilisé (figure 5.34). Un bouclier en étain est déposé sur une feuille en aluminium de 200 µm d'épaisseur par dépôt physique sous vide (PVD). Le motif en coin est ensuite usiné dans cette feuille d'aluminium à l'aide d'un tour d'ultraprécision. Le CHO est synthétisé par polymérisation plasma. Un dépôt d'aluminium d'une épaisseur de 0,1 µm est ensuite ajouté par PVD sur sa surface qui sera en contact avec la référence aluminium. Du polystyrène commercial fabriquée par l'entreprise Goodfellow est utilisé comme ablateur. Les différentes couches sont assemblées par collage à l'aide d'une solution de Poly-Vinyl-Alcool (PVA). Pour éviter tout problème de dé-cohésion, des renforts de colle époxy sont positionnés en périphérie des assemblages (figure 5.31).

Les cibles GEKKO XII : Les cibles développées sur le plastique CHOSi ont été tirées sur l'installation GEKKO XII lors de deux campagnes expérimentales en 2014 et 2016. Un premier dimensionnement

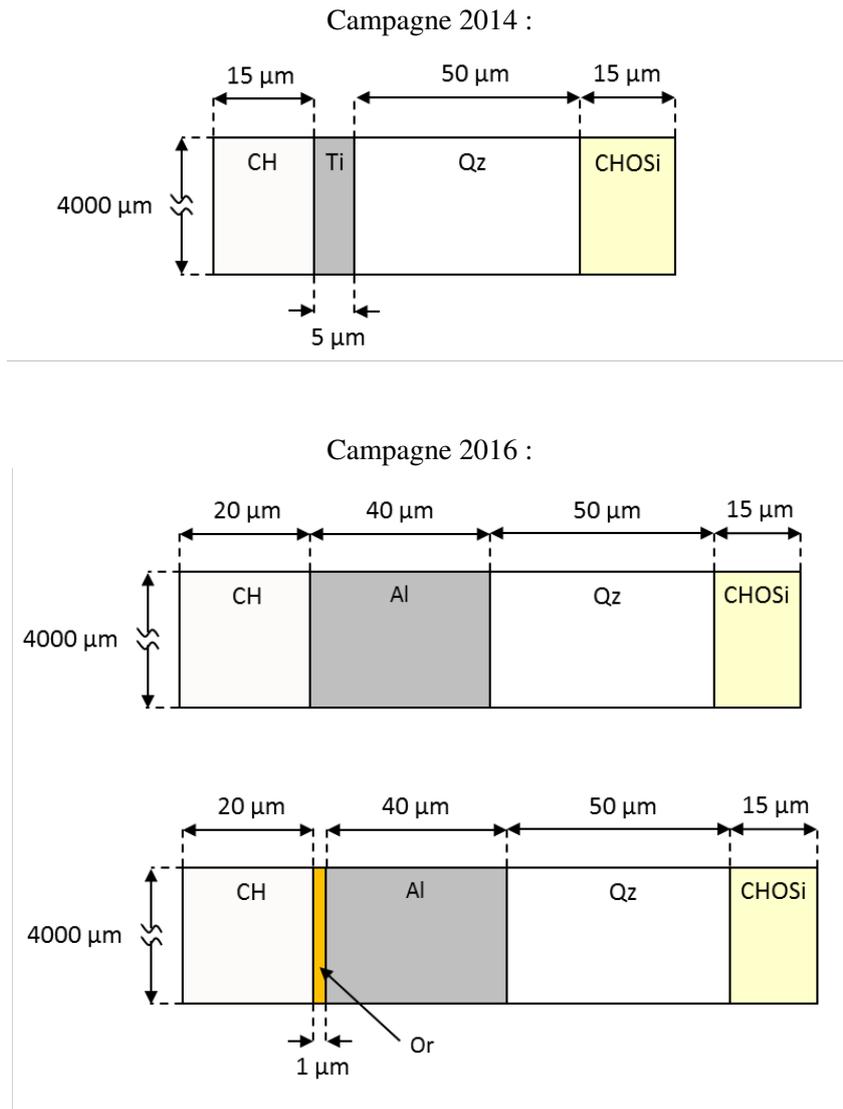


FIGURE 5.35 : Schéma des cibles GEKKO XII.

ment a été utilisé avec un bouclier en titane d'une épaisseur de $5\ \mu\text{m}$ lors de la campagne expérimentale 2014 (figure 5.35 en haut). Les résultats ont montré du préchauffage dans le quartz non prédit par les simulations hydrodynamiques. Lors de la campagne 2016, nous avons donc changé le bouclier. Des cibles similaires à celles éprouvées sur le plastique dopé au germanium CHOGe et tirées sur la même installation laser en 2011 [159] ont été utilisées. Elles se composent d'un bouclier en aluminium d'une épaisseur de $40\ \mu\text{m}$. Une couche en or d'une épaisseur de $1\ \mu\text{m}$ a, en plus, été ajoutée pour les tirs à hautes énergies.

Le CHOSi est déposé par polymérisation plasma sur une lame de quartz. Nous obtenons ainsi une interface très plane, sans colle, idéale pour déterminer le saut de vitesse à cette interface. L'ablateur est toujours du polystyrène. Les différentes couches sont assemblées par collage à l'aide d'une solution de

Poly-Vinyl-Alcool (PVA). Notons que le PVA est un polymère soluble dans l'eau et donc sensible à l'humidité ambiante. Les cibles ont ainsi été stockées sous atmosphère d'azote.

Mesures d'équation d'état des plastiques CHO et CHOSi

Sommaire

6.1	Objectifs	154
6.2	Résultats expérimentaux du CHO	156
6.2.1	Détermination de la vitesse de choc	156
6.2.2	Évolution de (P, ρ) le long de l'Hugoniot	160
6.2.3	Détermination de la réflectivité et de la température	162
6.3	Résultats expérimentaux du CHOSi	167
6.3.1	Détermination des états (P, ρ) sur l'Hugoniot	167
6.3.2	Détermination de la Réflectivité et de la température	172
6.4	Comparaison des données du CHO et du CHOSi	176
6.4.1	Propriétés thermodynamiques	176
6.4.2	Propriétés optiques	178

6.1 Objectifs

Nous souhaitons maintenant valider la démarche théorique décrite dans les chapitres précédents par une méthode expérimentale. Nous avons ainsi réalisé des séries de mesures lors de trois campagnes sur les installations laser LULI2000 et GEKKO XII. Celles-ci portent sur les états de pression, densité et température le long de l'Hugoniot des plastiques CHO et CHOSi. Les méthodes mises en place pour caractériser la matière sous choc ont été présentées dans le chapitre 5.

De précédentes études expérimentales ont été réalisées sur les matériaux plastiques. Par exemple, Koenig *et al.* [29] se sont intéressés au plastique bromé, Takamatsu *et al.* [160] au polyimide, et Osaki *et al.* [155] au polystyrène. Plus récemment, des mesures d'équations d'état ont été effectuées sur l'installation laser Oméga par Barrios *et al.* [161, 162]. Ils ont ainsi obtenu des données expérimentales le long de l'Hugoniot du polystyrène, du polypropylène, et d'ablateurs plastiques des capsules du NIF ; le plastique non dopé, le CHO, et le plastique dopé au germanium, le CHOGe. Le domaine thermodynamique étudié est le même que celui que nous visons. Dans le cas du polystyrène et du polypropylène, des mesures de pression, densité, température et réflectivité à 532 nm sont disponibles [161]. Nous comparerons nos valeurs à celles du polystyrène car sa densité normale ($\rho_0 = 1,05 \text{ g/cm}^3$) est proche des plastiques étudiés ici. Dans le cas des matériaux ablateurs des capsules NIF, les mesures ont uniquement porté sur les états (P, ρ) sur l'Hugoniot principale. Nous déterminerons la température en plus de la pression et de la densité sur l'Hugoniot des ablateurs du LMJ. Des données de réflectivité sous choc à 532 nm et à 1064 nm seront aussi analysées. De plus, nous apporterons des mesures inédites du CHOSi dopé à 2,4% en silicium, ce qui n'a jamais été publié à l'heure actuelle.

Pour les expériences Oméga de Barrios *et al.*, le quartz a été utilisé comme matériau de référence. Des modifications sur l'Hugoniot du quartz et sur la méthode de calcul de l'isentrope de détente ont conduit à deux réanalyses successives. Celles-ci ont été appliquées aux données du CHO dans les références [71, 132] mais peuvent, de la même façon, être étendues à tous les matériaux mesurés à partir d'une référence quartz. La première version publiée de ces résultats [162] utilise une forme analytique de l'Hugoniot du quartz dans le plan (U_s, U_p), déduite de données expérimentales de Hicks *et al.* [128]. Le calcul de l'isentrope de détente est réalisé à partir de l'équation d'état de Mie-Grüneisen, avec une valeur expérimentale du coefficient de Grüneisen. Hamel *et al.* [71] ont ensuite actualisé la forme analytique de l'Hugoniot du quartz, ce qui a conduit à une réanalyse des données du CHO. Par la suite, Knudson et Desjarlais [132] ont fourni une nouvelle version de l'Hugoniot du quartz et proposé une méthode pour calculer l'isentrope de détente ; méthode qui a été ajustée sur des simulations de dynamique moléculaire quantique et validée par des données expérimentales. Une nouvelle réinterprétation des mesures le long

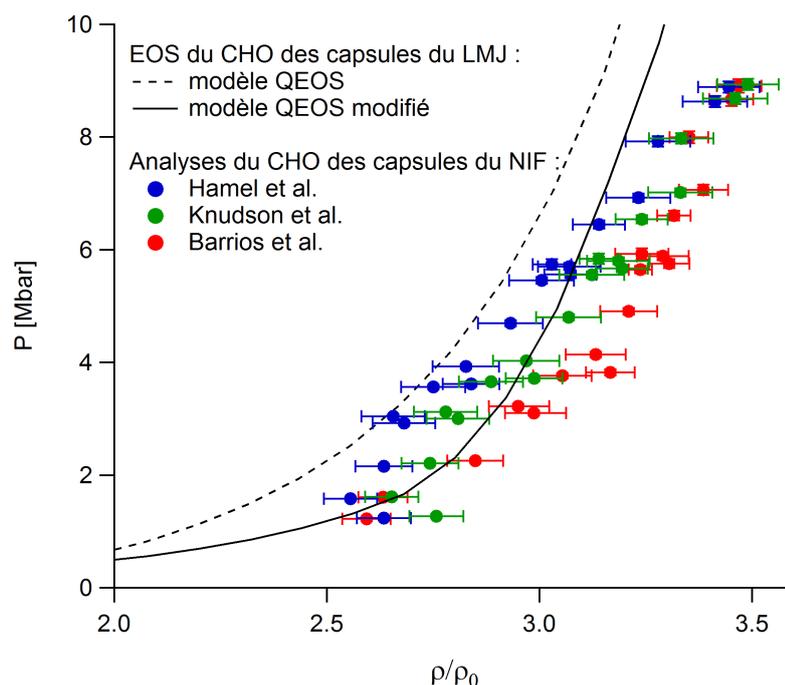


FIGURE 6.1 : Comparaison des réanalyses successives du CHO des capsules NIF à partir de mesures réalisées sur l’installation laser Oméga par Barrios et al. [162]. Les courbes d’Hugoniot calculées à l’aide du modèle QEOS sous sa forme initiale proposée par R. More et corrigée sur nos calculs de QMD ont été ajoutées.

de l’Hugoniot du CHO a alors été proposée. Les états $(P, \rho/\rho_0)$ issus de ces trois analyses, réalisées pour un même jeu de vitesses de choc, montrent de fortes variations en compression (figure 6.1). Les données obtenues sont plus compressibles que l’Hugoniot issue du modèle QEOS. Notons que les dernières valeurs analysées par Knudson et Desjarlais sont en accord avec le modèle QEOS que nous avons modifié dans le chapitre 4 pour restituer nos simulations de dynamique moléculaire quantique.

Nous proposons de mesurer l’Hugoniot du CHO avec une référence aluminium apportant ainsi de nouveaux points de comparaison. Nous calculerons l’isentropie de détente par les deux méthodes déjà évoquées, l’une utilisant une valeur expérimentale du coefficient de Grüneisen, l’autre la méthode de Knudson et Desjarlais.

Nous mesurerons ensuite l’Hugoniot du CHOSi avec une référence quartz. Nous utiliserons les mêmes méthodes de calcul de l’isentropie de détente que celles employées sur le CHO, ainsi que la dernière version de la forme analytique de l’Hugoniot du quartz [132]. Ces mesures nous permettront de montrer un comportement similaire des ablateurs plastiques le long de l’Hugoniot principale.

6.2 Résultats expérimentaux du CHO

Les mesures de l'Hugoniot du plastique CHO ont été réalisées sur l'installation laser LULI2000 à l'école Polytechnique en 2015. Deux faisceaux laser convertis à 2ω (527 nm) délivrent une énergie sur cible variant de 250 J à 900 J, avec une impulsion carrée de 1,5 ns et focalisée sur une tache focale de 600 μm de diamètre. Les cibles tirées ont été décrites dans le chapitre précédent, tout comme les techniques expérimentales employées ici. La mesure des états (P, ρ) est réalisée à l'aide de la méthode de la désadaptation d'impédance avec un matériau de référence en aluminium. Lorsque les faisceaux laser irradient la surface de la cible, un front d'ablation se forme. Un front de choc est alors créé par effet fusée puis se propage vers l'intérieur de la cible. La matière est comprimée et chauffée. Les états atteints par choc sont localisés sur la courbe d'Hugoniot. La configuration expérimentale utilisée au LULI2000 est suffisante pour générer des chocs d'une pression comprise entre 1 et 5 Mbar (en fonction de l'énergie laser) dans le plastique CHO. Dans ces conditions, lorsqu'il se propage de l'aluminium vers le plastique, le front de choc devient une surface réfléchissante. Les vitesses de choc, les réflectivités et les signaux d'émission propres sont alors obtenus à l'aide de diagnostics VISAR et d'une SOP couplés à des caméras à balayages de fente.

Les faisceaux sondes utilisés pour les VISAR ont été générés à partir d'un laser Nd :Yag ayant une impulsion carrée de ≈ 10 ns à 532 nm et à 1064 nm. Une lame séparatrice dichroïque permet d'avoir l'un des VISAR à 532 nm et l'autre à 1064 nm. Des mesures optiques peuvent ainsi être réalisées à ces deux longueurs d'onde. Comme expliqué dans le chapitre précédent, le CHO est bien plus absorbant dans le visible que dans l'infrarouge. L'utilisation d'un VISAR à 1064 nm nous permet ainsi de mesurer des vitesses de choc dans le plastique même pour des chocs moins forts pour lesquels aucun signal n'est détecté à 532 nm. Nous avons choisi une sensibilité de 4,42 km/s/frange pour le VISAR infrarouge, et de 15,74 km/s/frange pour le VISAR dans le visible.

6.2.1 Détermination de la vitesse de choc

La vitesse de choc dans le CHO est extraite des interférogrammes à l'aide du logiciel Neutrino. La superposition des phases issues de deux VISAR de sensibilité différentes détermine le décalage de frange à partir duquel on obtient la vitesse de choc. On considère ensuite le profil extrait du VISAR qui a la plus grande sensibilité. L'erreur sur la mesure est de $\pm 5\%$.

La vitesse de choc dans l'aluminium est obtenue en mesurant le temps de transit entre l'interface Al/CHO et le haut de la marche en aluminium, comme illustré sur la figure (6.2). On extrait alors l'évolution temporelle de l'intensité lumineuse moyennée dans les deux rectangles disposés de part

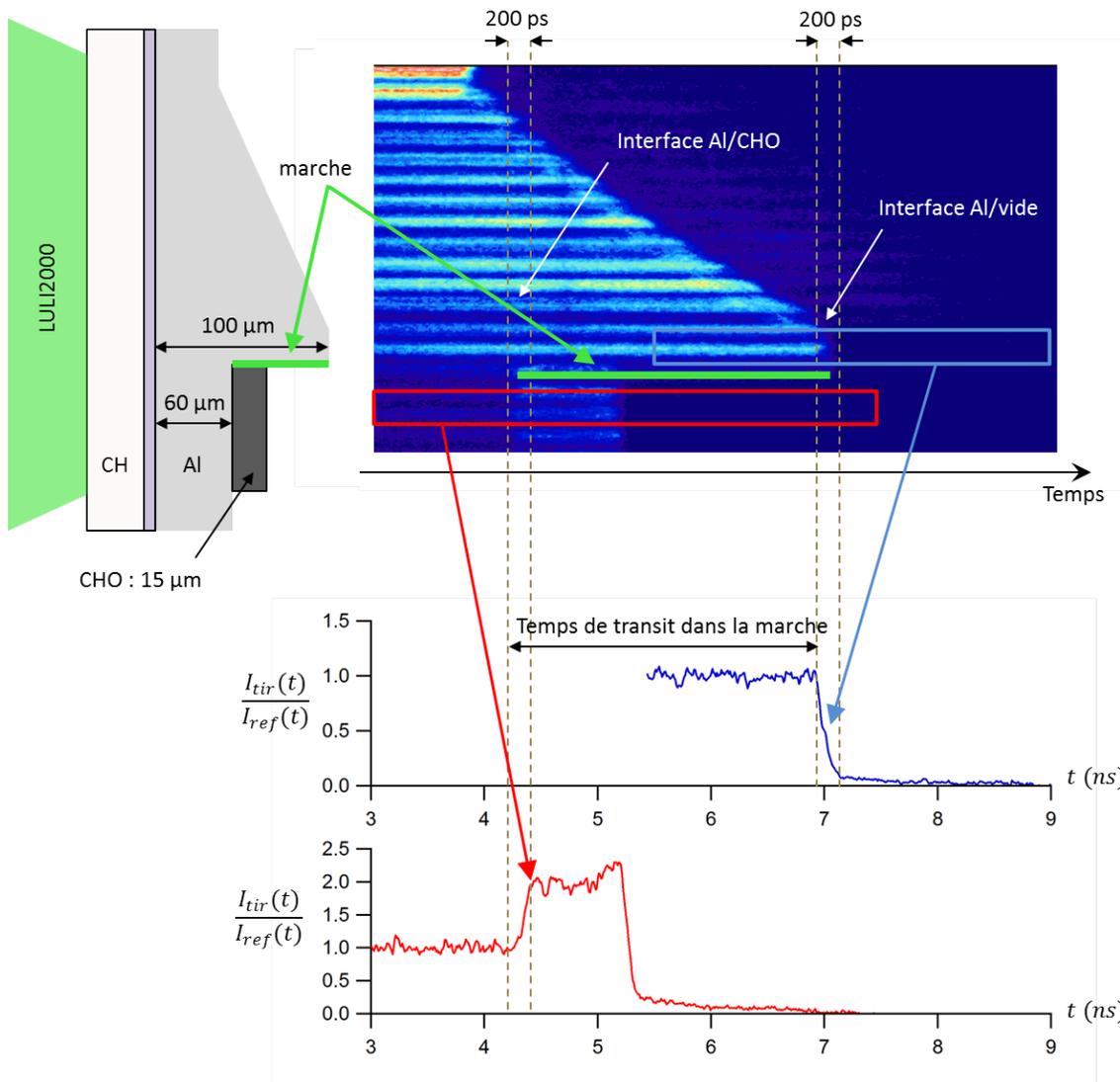


FIGURE 6.2 : Configuration expérimentale et image VISAR correspondante (en haut). Les rapports d'intensité moyennée dans les deux rectangles sont présentés en fonction du temps (en bas).

et d'autre de la marche. Le premier rectangle (en rouge) est positionné du côté du plastique CHO. On remarque un changement d'intensité lumineuse du faisceau sonde lorsque le choc se propage de l'aluminium au CHO. Le deuxième rectangle (en bleu) est situé sur le haut de la marche en aluminium. De cette façon, on peut déterminer l'instant exact où le choc se propage dans le CHO puis, l'instant où il débouche de l'aluminium, en haut de la marche. Connaissant la distance parcourue par le choc dans la marche, on en déduit une vitesse de choc moyenne. Pour une meilleure estimation de ces temps, nous avons corrigé l'intensité lumineuse I_{tir} par la forme du faisceau sonde collecté sur l'image de référence I_{ref} . prise quelques minutes avant le tir. Nous obtenons ainsi une réflectivité relative I_{tir}/I_{ref} .

Lorsque le choc est transmis de l'aluminium au plastique ou de l'aluminium au vide, l'intensité

numéro de tir	U_s^{Al} [km/s]	U_s^{CHO} [km/s]
7	16,72 (0,40)	17,93 (0,22)
9	23,09 (0,50)	26,83 (0,22)
11	20,73 (0,46)	23,87 (0,22)
12	16,81 (0,37)	18,20 (0,22)
13	16,45 (0,36)	17,70 (0,22)
14	22,64 (0,51)	26,16 (0,22)
15	16,15 (0,37)	17,23 (0,22)
19	15,63 (0,35)	16,32 (0,22)
20	14,53 (0,32)	14,75 (0,22)
23	14,44 (0,32)	14,60 (0,22)

TABLE 6.1 : Vitesses de choc mesurées de part et d'autre de l'interface entre l'aluminium et le CHO. Les valeurs entre parenthèses correspondent aux incertitudes sur la mesure.

du signal ne change pas instantanément. Le temps de réponse des diagnostics VISAR est donné par le produit de convolution de la largeur temporelle de la fente de la caméra streak et du retard induit par l'étalon. Pour une fenêtre temporelle de 5 ns sur les interférogrammes, ce temps de réponse est de ≈ 100 ps pour celui à 532 nm et de ≈ 150 ps pour le VISAR à 1064 nm. Ces délais sont doublés pour des fenêtres de 10 ns. Nous avons mesuré les temps de transit du choc dans la marche à partir du début de la variation d'intensité du signal. Celle-ci augmente lorsque le choc est transmis de l'aluminium au plastique et décroît lorsqu'il se propage de l'aluminium au vide. On remarque que les temps de montée et de descente de l'intensité sont en bon accord avec les temps de réponse calculés. La stationnarité du choc a été vérifiée en analysant le contour du coin.

Notons que des effets de bord peuvent apparaître sur le côté de la marche en aluminium. Ceux-ci sont dus à des ondes de raréfactions qui se forment lorsque le choc débouche en surface libre sur le côté de la marche. Ces ondes peuvent dépasser l'onde de choc entraînant une réduction de la pression ainsi qu'une modification des paramètres du choc (U_s, U_p). Cela se traduit par une courbure du choc sur le bord du coin. Ce problème a été étudié pour la première fois lors d'expériences de canon à gaz par Al'Tshuler *et al.* [163]. Il a été montré que le dépassement des ondes de choc par des ondes sonores latérales peut être calculé à partir de la vitesse du son et d'une construction géométrique. Dans nos expériences, nous nous attendons à ce que ces effets se produisent sur 10 μm environ, ce qui correspond à $\approx 1/4$ de franges sur les images VISAR. Pour s'en prémunir, nous avons dimensionné le coin de façon à avoir une surface plane de 40 μm environ, largeur identique à la hauteur de la marche. De plus, les

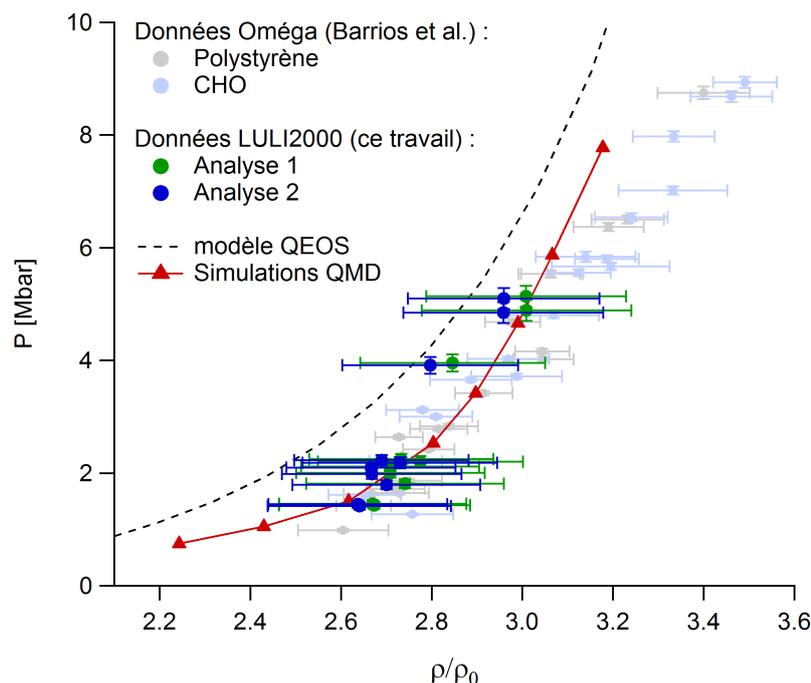


FIGURE 6.3 : Hugoniot du plastique CHO dans le plan $(P, \rho/\rho_0)$. Les valeurs expérimentales analysées par deux méthodes différentes pour le calcul de l'isentrope de détente sont indiquées en vert et en bleu. L'« analyse 1 » correspond à l'utilisation de la méthode de Knudson et Desjarlais, l'« analyse 2 » à l'utilisation d'un coefficient de Grüneisen constant. Les données obtenues sur l'installation laser Oméga, ainsi que le modèle QEOS et nos simulations de QMD sont aussi indiqués.

temps de débouché ont été mesurés suffisamment loin de la marche. On laisse généralement une frange d'écart.

Les erreurs sur la vitesse de choc dans l'aluminium sont déterminées à partir de l'incertitude sur la mesure du temps de transit (≈ 5 pixels), de l'incertitude sur la mesure de la hauteur de la marche (entre 0,3 et 0,5 μm), ainsi que des erreurs sur la vitesse de balayage de la streak ($\approx 2\%$ sur le temps de transit) et sur la stationnarité du choc ($\approx 2\%$ sur la vitesse de choc). L'erreur totale est la somme quadratique de toutes ces contributions, puisque celles-ci sont indépendantes les unes des autres. Nous avons obtenu des erreurs légèrement supérieures à 2% sur la vitesse de choc. Celles-ci ayant été mesurées entre 14 et 23 km/s, nous obtenons des erreurs équivalentes entre 0,3 et 0,5 km/s.

Les vitesses de choc mesurées dans l'aluminium et dans le plastique CHO à l'interface entre ces deux matériaux sont indiquées dans le tableau (6.1).

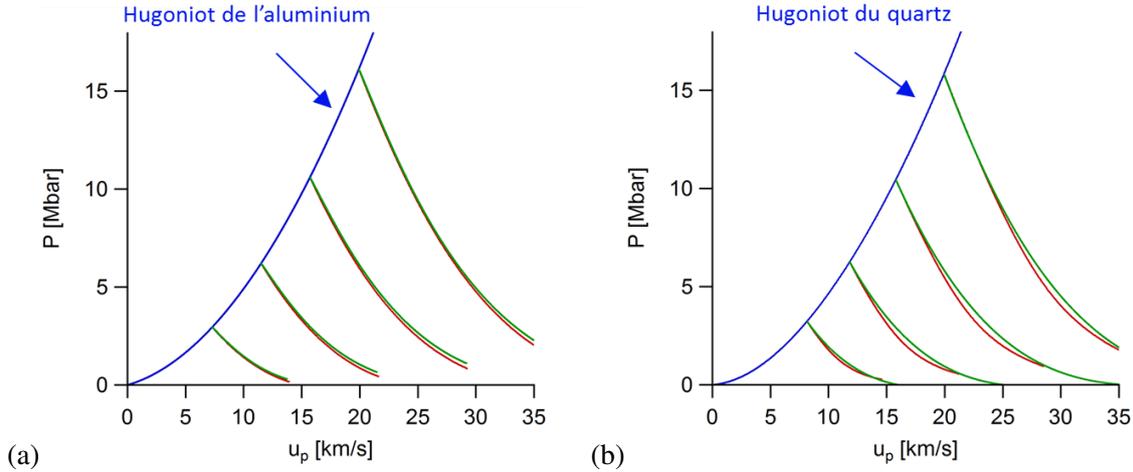


FIGURE 6.4 : Comparaison des isentropes de détente calculés par les deux méthodes présentées ici : en rouge la méthode avec un coefficient de Grüneisen constant, en vert la méthode de Knudson et Desjarlais. La figure de gauche (a) correspond au cas d'une référence aluminium, la figure de droite (b) au quartz.

6.2.2 Évolution de (P, ρ) le long de l'Hugoniot

Nous avons déterminé les états sous choc dans le CHO à partir de la méthode de la désadaptation d'impédance. On utilise alors comme données d'entrée les vitesses de choc mesurées de part et d'autre de l'interface entre la référence aluminium et le plastique. Il faut ensuite connaître l'Hugoniot du matériau de référence, ici l'aluminium, puis calculer une isentrope de détente. Nous avons utilisé une fonction analytique de l'Hugoniot de l'aluminium dans le plan (U_s, U_p) . Cette dernière a été ajustée sur des données expérimentales. Nous avons choisi la forme la plus récente, publiée par Knudson et Desjarlais [133] en 2015. Enfin, deux méthodes analytiques ont été utilisées pour le calcul de l'isentrope de détente (comme expliqué dans l'introduction de ce chapitre).

L'utilisation de fonctions analytiques dans la désadaptation d'impédance permet de propager facilement les erreurs jusqu'à l'état final sous choc dans le plastique. Ce calcul s'effectue dans le plan (P, U_p) . Quatre sources d'erreurs indépendantes les unes des autres sont alors considérées. Deux d'entre elles proviennent des erreurs systématiques sur la mesure de la vitesse de choc dans le matériau de référence et dans le matériau d'étude. Les deux autres sont fournies par les incertitudes sur l'Hugoniot de la référence et sur le calcul de l'isentrope de détente. L'erreur sur la pression P et sur la vitesse fluide U_p est la somme quadratique de toutes ces contributions. L'erreur sur la densité ρ se calcule à l'aide de la relation de Rankine-Hugoniot $\rho = \rho_0 U_s / (U_s - U_p)$ et de la formule statistique de propagation des incertitudes¹.

1. La formule statistique de propagation des incertitudes s'exprime comme : $\Delta\rho = \sqrt{\sum_{i=1}^N \left(\frac{\partial\rho}{\partial x_i}\right)^2 (\Delta x_i)^2}$. Dans notre cas, nous obtenons : $\frac{\Delta\rho}{\rho} = \sqrt{\left(\frac{\Delta\rho_0}{\rho_0}\right)^2 + \frac{U_p^2}{(U_s - U_p)^2} \left[\left(\frac{\Delta U_s}{U_s}\right)^2 + \left(\frac{\Delta U_p}{U_p}\right)^2\right]}$.

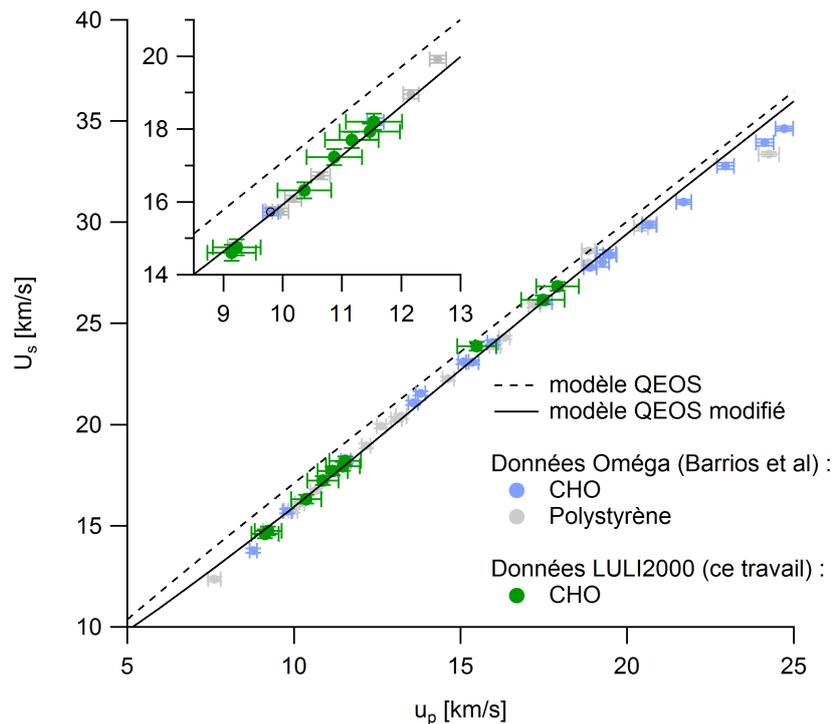


FIGURE 6.5 : Hugoniot du plastique CHO dans le plan (U_s, U_p) .

L'erreur relative sur les vitesses de choc sont de 2 – 3%, ce qui conduit à des erreurs de 3 – 4% sur la pression et de 8% environ sur la densité.

La figure (6.3) présente les états mesurés sur l'Hugoniot du CHO dans le plan pression-compression à partir des deux traitements. On remarque des différences en compression entre ces deux méthodes de l'ordre de 1,5%, bien inférieures aux incertitudes sur la mesure de ρ/ρ_0 ($\approx 8\%$). De plus, ces écarts sont moins importants que ceux observés lors des réanalyses des points expérimentaux de Barrios *et al.* (figure 6.1). Ceux-ci ayant été mesurés à l'aide d'une référence quartz, les écarts s'expliquent par une plus forte déviation entre les isentropes calculées pour le quartz que pour l'aluminium (figure 6.3) ainsi que par les différentes formes analytiques de l'Hugoniot du quartz. Nous utiliserons les états déterminés à partir de la méthode de Knudson et Desjarlais, étant donné que cette dernière est plus récente et qu'elle a été validée par des données expérimentales. Les valeurs obtenues sont reproduites dans le tableau (6.2).

Les mesures sur l'Hugoniot du polystyrène et du CHO réalisées sur l'installation Oméga par Barrios *et al.* sont également indiquées sur la figure (6.3). Elles ont été analysées à l'aide de l'Hugoniot actualisée du quartz et de la méthode de Knudson et Desjarlais pour le calcul de l'isentrope de détente. On remarque qu'il y a peu de différence en compression entre les Hugoniot de ces deux matériaux. De plus, ces valeurs sont en accord avec nos mesures pour des pressions inférieures à 6 Mbar et valident nos simulations de dynamique moléculaire quantique.

numéro de tir	U_s [km/s]	U_p [km/s]	P [Mbar]	ρ/ρ_0
7	17,93 (0,22)	11,47 (0,51)	2,20 (0,13)	2,77 (0,23)
9	26,83 (0,22)	17,91 (0,64)	5,14 (0,26)	3,01 (0,22)
11	23,87 (0,22)	15,48 (0,58)	3,95 (0,21)	2,84 (0,20)
12	18,20 (0,22)	11,54 (0,47)	2,25 (0,13)	2,73 (0,20)
13	17,70 (0,22)	11,16 (0,45)	2,11 (0,12)	2,70 (0,20)
14	26,16 (0,22)	17,47 (0,65)	4,89 (0,26)	3,01 (0,23)
15	17,23 (0,22)	10,87 (0,47)	2,00 (0,12)	2,71 (0,21)
19	16,32 (0,22)	10,37 (0,45)	1,81 (0,11)	2,74 (0,22)
20	14,75 (0,22)	9,23 (0,40)	1,46 (0,09)	2,67 (0,20)
23	14,60 (0,22)	9,14 (0,41)	1,43 (0,09)	2,67 (0,21)

TABLE 6.2 : Hugoniot du CHO mesurées sur l'installation laser LULI2000 à partir d'une référence aluminium.

La figure (6.5) présente ces mêmes états dans le plan (U_s, U_p) . Nos mesures sont en accord avec le modèle QEOS que nous avons modifié pour restituer les simulations de dynamique moléculaire quantique.

6.2.3 Détermination de la réflectivité et de la température

Nous venons de déterminer des états (P, ρ, U_s, U_p) sur l'Hugoniot du CHO au moment du débouché du choc dans ce matériau à l'interface avec l'aluminium. Nous cherchons maintenant à obtenir la température du choc correspondante. Nous devons tout d'abord déterminer la réflectivité du front de choc à 532 nm, ce qui nous permettra ensuite de mesurer une température de corps gris. Les faisceaux sondes étant de deux longueurs d'onde différentes, nous mesurons la réflectivité à 1064 nm en plus de celle à 532 nm.

Réflectivité du front de choc : La réflectivité du choc dans le CHO est extraite des images VISAR à partir d'un rapport d'intensité que l'on calibre sur un signal dont on connaît la réflectivité absolue. L'intensité temporelle du faisceau sonde $I_{\text{tir}}(t)$ est prélevée sur une image VISAR enregistrée durant un tir en faisant une coupe verticale sur une largeur de quelques franges. Celle-ci s'exprime à partir de l'intensité initiale du faisceau sonde $I_0(t)$ et de la réflectivité apparente du choc $R^{\text{app}}(t)$ comme :

$$I_{\text{tir}}(t) = R^{\text{app}}(t)I_0(t) \quad (6.1)$$

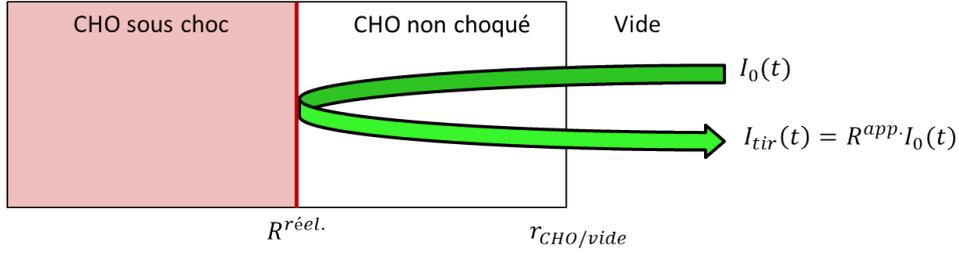


FIGURE 6.6 : Réflexion du faisceau sonde sur le front de choc.

En tenant compte des réflexions de Fresnel à l'ordre 2 et de l'absorption dans le CHO (figure 6.6), on en déduit la réflectivité réelle du front de choc dans le CHO par la relation :

$$R^{\text{réel.}}(t) = \frac{R^{\text{app.}}(t) - r_{\text{CHO/vide}}}{(1 - r_{\text{CHO/vide}})^2} e^{2\alpha l(t)}, \quad (6.2)$$

où $r_{\text{CHO/vide}}$ est la réflexion du faisceau sonde à l'interface CHO/vide, α est le coefficient d'absorption dans le CHO et l l'épaisseur de l'échantillon traversé par le faisceau sonde. En supposant que les propriétés d'absorption du CHO n'ont pas été modifiées durant le tir, on prendra la valeur mesurée de $\alpha = 1,31 \cdot 10^{-2} \mu\text{m}^{-1}$. L'épaisseur de CHO traversée par le faisceau sonde varie au cours du temps. De façon générale, on l'exprime en fonction de la vitesse du front de choc évoluant dans le CHO et de l'épaisseur initiale de l'échantillon e_{CHO} , suivant :

$$l = e_{\text{CHO}} - \int_{t_{\text{Al/CHO}}}^{t_{\text{CHO/vide}}} U_s(t) dt. \quad (6.3)$$

Dans nos expériences, nous avons besoin de connaître la réflectivité lors du débouché du choc dans le CHO, c'est-à-dire pour $l = e_{\text{CHO}}$.

Toute la difficulté de la mesure de la réflectivité réside dans la détermination de l'intensité initiale du faisceau sonde $I_0(t)$ qui nous est inconnue. Nous avons procédé de différentes façons.

Tout d'abord, nous avons prélevé l'intensité du faisceau sonde sur l'image de référence réalisée sur la cible non choquée. Celle-ci est transmise au VISAR après réflexion à l'interface Al/CHO et correspond à $I_{\text{réf.}}(t) = R_{\text{ini.}} I_0(t)$. Dans ce cas, la réflectivité apparente du choc s'écrit comme :

$$R^{\text{app.}}(t) = \frac{I_{\text{tir}}(t)}{I_0(t)} = \frac{I_{\text{tir}}(t)}{I_{\text{réf.}}(t)} R_{\text{ini.}}. \quad (6.4)$$

Il suffit donc de connaître la réflectivité initiale $R_{\text{ini.}}$ pour déterminer la réflectivité du choc dans le CHO.

Notons que ces deux profils d'intensité sont collectés sur deux images VISAR différentes prises à quelques minutes d'intervalle. Il faut alors prendre en compte les fluctuations spatio-temporelles du

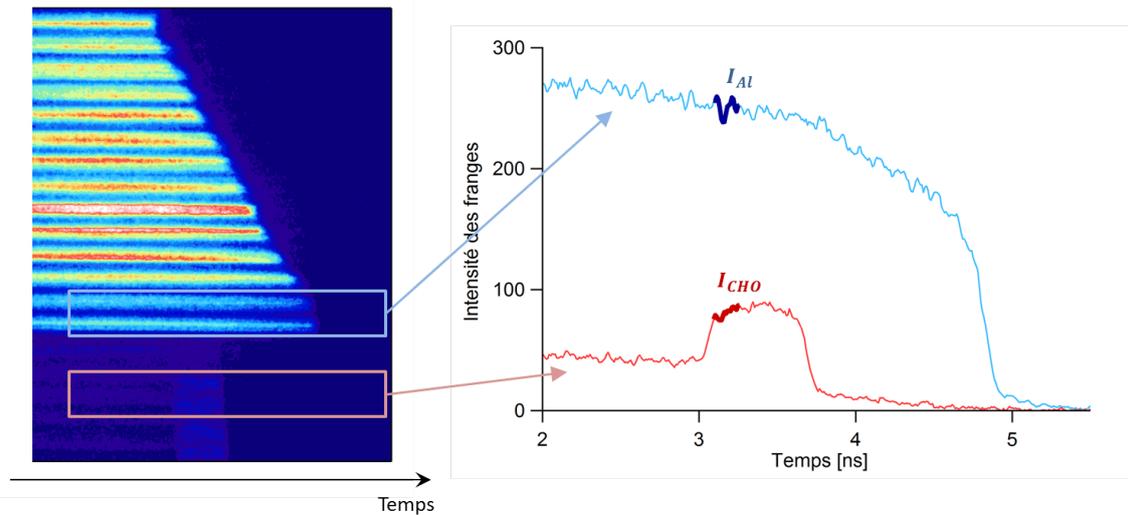


FIGURE 6.7 : Illustration de la détermination de la réflectivité du front de choc dans le CHO ; à gauche une image VISAR réalisée pendant un tir, à droite les intensités des franges moyennées dans les deux rectangles.

faisceau sonde d'un tir à l'autre. Dans ces conditions, on ajuste $I_{\text{réf.}}(t)$ par translation verticale et/ou horizontale pour qu'elle coïncide avec l'intensité des franges avant le débouché du choc dans le CHO. Cette méthode a été utilisée dans le chapitre précédent pour calibrer la réflectivité du choc dans le quartz en fonction de la vitesse de choc.

En utilisant les indices optiques de l'aluminium et du CHO, ainsi que les réflexions de Fresnel à l'ordre 2, on calcule la réflectivité initiale des faisceaux sondes. Celles-ci sont de 58% à 532 nm et de 89% à 1064 nm.

À partir de ces valeurs, on obtient des réflectivités du front de choc dans le CHO incohérentes, supérieures à 100%. Ce comportement anormal s'explique par des valeurs de la réflectivité initiale trop importantes. Les indices optiques ayant été mesurés précisément, nous supposons que des impuretés à l'interface Al/CHO diffusent une partie du faisceau sonde. Ces impuretés peuvent provenir d'une oxydation due à la colle PVA et aux conditions de stockage.

Nous avons ensuite calibré l'intensité dans le CHO à partir de l'intensité du faisceau sonde réfléchi en haut de la marche sur une même image VISAR, comme illustré sur la figure (6.7). Les intensités prélevées de part et d'autre de la marche sont notées $I_{\text{CHO}}(t)$ et $I_{\text{Al}}(t)$. La première correspond à une réflexion sur l'interface Al/CHO, puis sur le front de choc lorsque celui-ci se propage dans le plastique. En utilisant les précédentes notations, on l'écrit comme $I_{\text{CHO}}(t) = R^{\text{app.}}(t)I_0(t)$. La seconde correspond à la réflexion miroir à l'interface Al/vide, c'est-à-dire $I_{\text{Al}}(t) = r_{\text{Al/vidé}}I_0(t)$.

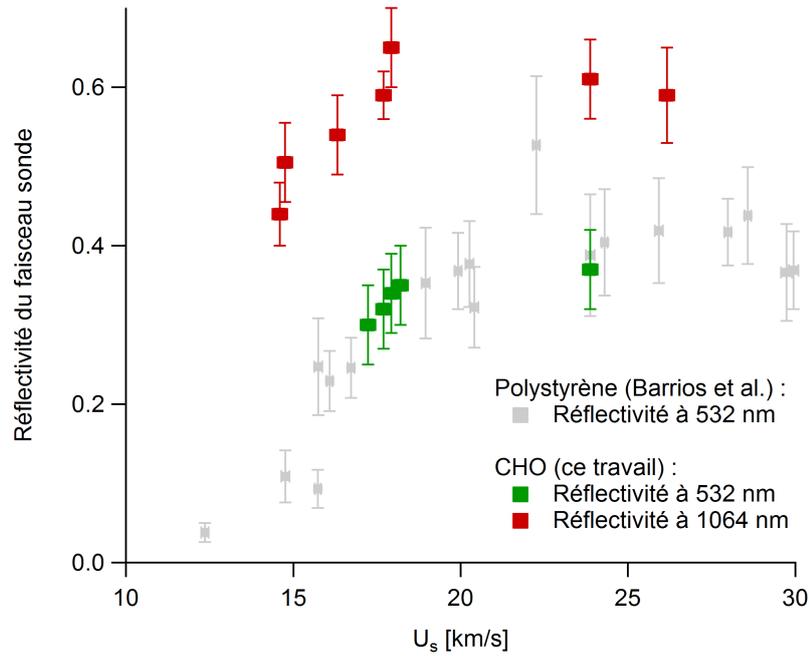


FIGURE 6.8 : Réflectivité à 532 nm et 1064 nm du plastique CHO choqué en fonction de la vitesse de choc.

Dans ce cas, la réflectivité apparente du front de choc est :

$$R^{\text{app.}} = \frac{I_{\text{CHO}}}{I_{\text{Al}}} r_{\text{Al/vidé.}} \quad (6.5)$$

On moyenne l'intensité des franges à l'instant où le choc débouche dans le CHO sur une durée correspondant au temps de réponse du diagnostic (quelques centaines de picosecondes). La relation (6.2) nous permet ensuite de déterminer la réflectivité réelle du choc.

Connaissant la vitesse de choc correspondante, nous obtenons des points $R(U_s)$. Cependant, du fait de la forte absorption du faisceau sonde, peu de tirs ont pu être exploités. La figure (6.8) présente les réflectivités mesurées à 532 nm et 1064 nm. Ces valeurs augmentent avec la vitesse de choc puis saturent à $\approx 40\%$ à 532 nm et à $\approx 60\%$ à 1064 nm. Ce comportement a déjà été observé sur des matériaux présentant une transition isolant-semiconducteur-métal lorsque la température augmente et que le gap se ferme [164, 100]. Les valeurs mesurées à 532 nm sont en accord avec celles obtenues par Barrios *et al.* sur le polystyrène et seront utilisées pour déterminer une température de corps gris équivalente.

Température du choc : Nous obtenons la température par pyrométrie à l'aide d'une SOP. Son principe de fonctionnement ainsi que la méthode employée pour calibrer le système optique ont été expliqués dans le chapitre 5. En utilisant ces calibrations, nous pouvons relier le nombre de coups collectés sur la caméra CCD à une température de corps gris équivalente.

On note I_{SOP} le nombre de coups auquel nous avons soustrait la composante quasi-continue due au bruit (≈ 42 coups). Nous nous intéressons aux valeurs détectées dans le CHO juste après le débouché du choc à l'interface Al/CHO. Il faut alors tenir compte de l'absorption dans le CHO. Le nombre de coups sur la SOP devient donc : $N = I_{SOP}e^{\alpha e_{CHO}}$. On détermine ensuite la température $T(U_s)$ par la relation :

$$T(U_s) = \frac{T_0}{\ln\left(1 + \frac{A(1-R(U_s))}{N}\right)}, \quad (6.6)$$

avec, T_0 et A les constantes de calibration de la SOP ($T_0 = 1,83 \pm 0,09$ eV et $A = 4833 \pm 240$) et $R(U_s)$ la réflectivité du front de choc à 532 nm.

L'erreur sur la température est déterminée par la méthode des dérivées partielles. Trois sources d'erreurs sont alors prises en compte : sur les constantes de calibration, sur la réflectivité ($\approx 15\%$) et sur la fluctuation du nombre de coups sur la SOP (≈ 5 coups). Nous obtenons alors des incertitudes totales entre 15 – 25%.

La figure (6.9) présente les températures mesurées en fonction de la compression $\frac{\rho}{\rho_0}$. Nos mesures sont en accord avec celles du polystyrène obtenues sur l'installation laser Oméga et réanalysées avec la référence quartz de Knudson. De plus, elles sont très proches des valeurs calculées par la dynamique moléculaire quantique.

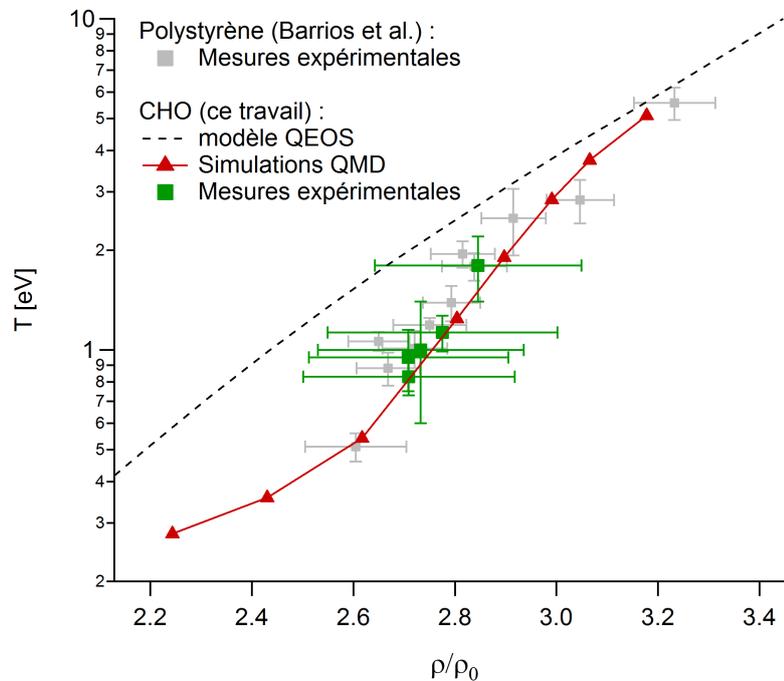


FIGURE 6.9 : Courbe d'Hugoniot du plastique CHO dans le plan $(T, \rho/\rho_0)$.

Conclusions :

Nous avons mesuré des états (P, ρ, T) sur l'Hugoniot du plastique CHO. Nous avons montré que nos résultats sont en bon accord avec de précédentes mesures effectuées par Barrios *et al.* sur le polystyrène et le plastique CHO utilisé sur les capsules du NIF. L'ensemble de ces résultats expérimentaux valident nos simulations de dynamique moléculaire quantique.

6.3 Résultats expérimentaux du CHOSi

Les mesures d'états sur l'Hugoniot du plastique CHOSi ont été réalisées sur l'installation laser GEKKO XII à l'Université d'Osaka au Japon au cours de deux campagnes expérimentales en 2014 et en 2016. Cette installation dispose de douze faisceaux laser. Trois d'entre eux sont convertis à 2ω (527 nm), les neuf autres étant convertis à 3ω (351 nm). Ils délivrent une énergie sur cible variant de 600 J à 2ω et de 900 J à 3ω , contenue dans une impulsion laser de 2,5 ns, et focalisée sur une tache focale de 600 μm . Des cibles multicouches planes ont été utilisées. Elle se composent d'une lame de quartz sur laquelle du CHOSi a été déposé par polymérisation plasma (comme détaillé dans le chapitre précédent).

De la même façon que sur l'installation LULI2000, deux diagnostics VISAR et une SOP sont utilisés pour obtenir des données d'équation d'état telles que la pression, la densité et la température, ainsi que les propriétés optiques du front de choc. Le quartz étant un matériau transparent, nous pouvons suivre la propagation du choc, puis sa transmission dans le CHOSi. L'analyse des images VISAR nous donne ainsi accès à des vitesses de choc instantanées. Les chocs générés sur l'installation GEKKO XII et les cibles utilisées ont permis de mesurer des pressions comprises entre 1 et 5 Mbar sur l'Hugoniot du CHOSi. Les faisceaux sondes des deux VISAR ont été générés à partir d'un laser Nd :Yag qui émet une impulsion carrée de ≈ 10 ns à 532 nm. Les résultats des deux campagnes expérimentales présentés ici ont été obtenus en collaboration avec l'équipe de Norimasa Osaki de l'université d'Osaka.

6.3.1 Détermination des états (P, ρ) sur l'Hugoniot

Présence de franges parasites sur les images VISAR : Lors des premiers tirs réalisés en 2014, nous avons observé la présence de franges parasites sur les images VISAR, comme présenté sur la figure (6.10). Ces franges sont rectilignes et se superposent aux franges réelles qui évoluent au cours du temps. Leur présence rend plus difficile la détection du saut de frange à l'interface entre le quartz et le CHOSi. Elles donnent une fausse évolution de la phase et parfois, l'impression de sauts de franges supplémentaires et une perte de contraste.

Ces franges parasites étant uniquement présentes sur les cibles de CHOSi, nous supposons qu'elles

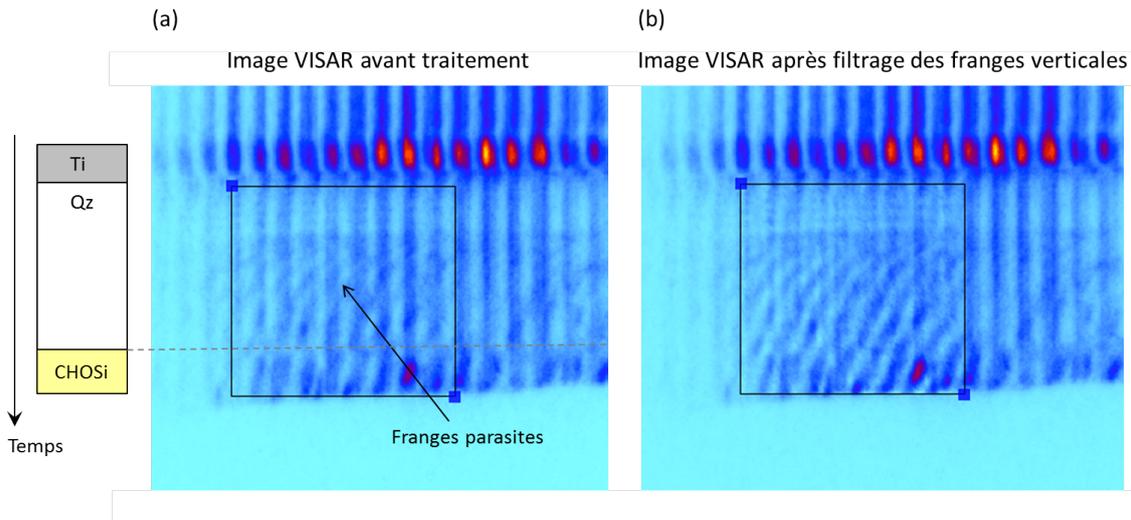


FIGURE 6.10 : (a) Exemple d'une image VISAR obtenue avec une cible de CHOSi. Des franges parasites rectilignes sont visibles lorsque le choc se propage dans le quartz. (b) Même image VISAR après traitement de franges parasites dans le rectangle noir.

proviennent d'une réflexion à l'interface entre le CHOSi et le vide. A titre de comparaison, les autres cibles utilisées aux cours de ces campagnes et notamment, les cibles composées de quartz en face arrière, ne présentent pas ces franges. Elles ne proviennent donc pas de réflexion du faisceau sonde dans la chambre d'expérience.

Pour soustraire ces franges parasites, quand elles sont présentes, et extraire la phase des images VISAR, nous avons utilisé une option du logiciel Neutrino prévue à cet effet. Il faut alors obtenir l'interfrange et l'orientation de ces franges parasites. On cherche un endroit de l'image où ces franges ne se superposent pas aux franges réelles. Un filtre est ensuite appliqué à l'image pour ne garder que les franges mouvantes dans le quartz et le CHOSi. La figure (6.10) (b) montre un exemple d'application de ce traitement.

Sur certaines cibles, nous avons ajouté une lame de quartz traitée anti-reflet à la longueur d'onde du faisceau sonde en face arrière de la cible. Cette technique nous a permis d'obtenir des images sans franges parasites.

Détermination des vitesses de choc : La détermination des états (P, ρ) sur l'Hugoniot du CHOSi nécessite de connaître la vitesse du front de choc dans le quartz et dans le CHOSi à l'interface entre ces deux matériaux.

On détermine ces vitesses à partir de la variation de la phase donnée à 2π près par le diagnostic. L'extraction de la phase se fait pour chaque image VISAR à l'aide du logiciel Neutrino, après application

du traitement de franges parasites. On détermine ensuite la variation de la phase en faisant coïncider les mesures de deux VISAR de sensibilités différentes. Nous avons également vérifié que les vitesses obtenues par cette méthode sont cohérentes avec les vitesses moyennes données par les temps de transit dans le quartz et dans le CHOSi.

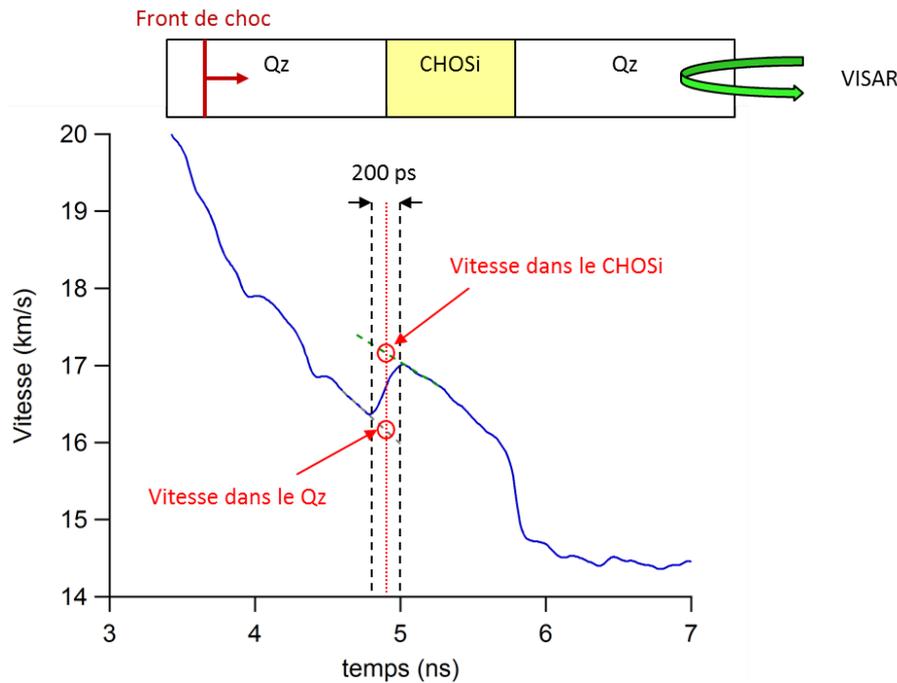


FIGURE 6.11 : Extraction des vitesses de choc dans le quartz et dans le CHOSi.

On considère le profil du VISAR qui possède la plus grande sensibilité (4,476 km/s/frange dans le vide). Les vitesses sont ensuite corrigées avec l'indice du quartz à 532 nm ($n = 1,547$). Une fois le profil de vitesse extrait, il faut apporter quelques corrections supplémentaires. Premièrement, il faut tenir compte de l'indice du CHOSi ($n = 1,5505$ à 532 nm) qui est légèrement différent de celui du quartz. La vitesse mesurée est apparente et il faut appliquer un facteur $\frac{1,547}{1,5505}$ aux vitesses extraites dans le CHOSi. Il faut ensuite considérer la résolution temporelle du VISAR qui provient de la résolution de la caméra streak et du retard introduit par l'étalon. Ainsi, bien que la transmission du choc du quartz au CHOSi soit quasi-instantanée, le saut de vitesse mesuré l'est avec une résolution de 200 ps environ. Les vitesses de choc sont donc issues d'extrapolation sur 300 ps avant et après la transmission du choc, comme illustré sur la figure (6.11). Les vitesses mesurées dans la référence quartz et dans le CHOSi sont fournies dans le tableau (6.3).

États (P, ρ) sur l'Hugoniot : Les états (P, ρ) obtenus à partir des vitesses de choc sont indiqués sur la figure (6.12). La courbe d'Hugoniot du quartz a été calculée à l'aide d'une fonction analytique ajustée

numéro de tir	U_s^{Qz} [km/s]	U_s^{CHOSi} [km/s]
37759	16,612 (0,29)	18,062 (0,29)
37762	21,936 (0,48)	24,865 (0,48)
37826	14,386 (0,29)	15,281 (0,22)
37755	22,736 (0,48)	25,859 (0,48)
37816	16,015 (0,29)	17,330 (0,29)
37776	16,944 (0,29)	18,594 (0,29)
37778	21,816 (0,48)	24,805 (0,48)
39675	13,228 (0,29)	14,117 (0,29)
39676	13,139 (0,29)	14,066 (0,29)
39685	11,963 (0,29)	12,955 (0,29)

TABLE 6.3 : Vitesses de choc mesurées de part et d'autre de l'interface entre le quartz et le CHOSi. Les valeurs entre parenthèses correspondent aux incertitudes sur la mesure.

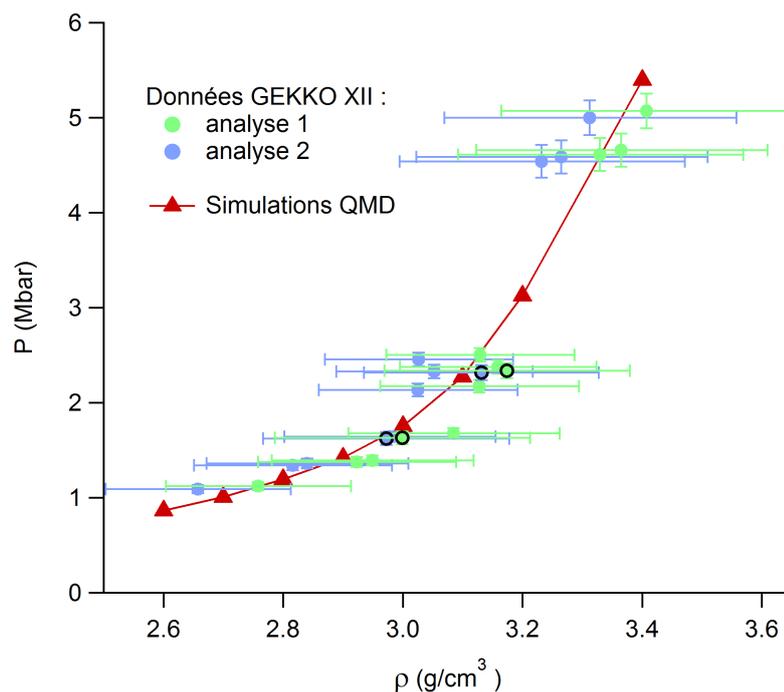


FIGURE 6.12 : États sur l'Hugoniot du CHOSi déterminés par les deux méthodes employées pour le calcul de l'isentrope de détente ; en bleu la méthode avec un coefficient de Grüneisen constant, en vert la méthode de Knudson et Desjarlais. Les cercles noirs sont des états déterminés avec une référence aluminium.

sur des données expérimentales par Knudson et Desjarlais [132]. Les deux méthodes précédemment évoquées ont été utilisées pour le calcul de l'isentrope de détente. La propagation des erreurs se fait de

la même façon que pour la référence aluminium.

On remarque des écarts importants en densité entre les deux méthodes. Ceux-ci sont de $0,1 \text{ g/cm}^3$ environ, ce qui correspond à une différence de 3 à 4% sur le régime de densité étudié. Ces écarts sont 2 à 3 fois plus importants que ceux observés avec la référence aluminium. Les deux jeux de pression-densité sont néanmoins en accord avec l'Hugoniot issue de la dynamique moléculaire quantique.

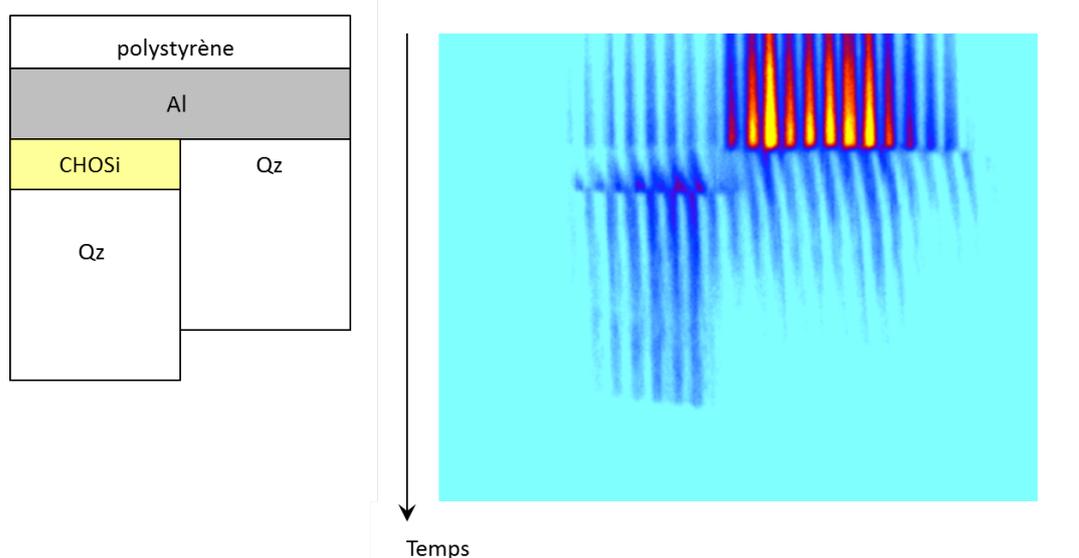


FIGURE 6.13 : Schéma des cibles assemblées avec une référence aluminium et image VISAR correspondante.

Nous avons ensuite vérifié ces états à partir d'une référence aluminium. Les cibles utilisées sont présentées sur la figure (6.13). Elles ont été construites par l'équipe de N. Osaki au cours de la campagne expérimentale 2016. Elles se composent d'une lame de quartz ajoutée à côté de l'échantillon de CHOSi. Tous deux sont collés sur une couche d'aluminium. On s'intéresse à la transmission du choc à l'interface entre l'aluminium et le CHOSi d'un côté, et le quartz de l'autre. Deux matériaux de référence sont utilisés ici. Premièrement, le quartz permet d'obtenir précisément l'état du choc dans l'aluminium juste avant la propagation du choc dans le CHOSi. Deuxièmement, l'aluminium sert de référence pour la mesure indirecte de l'état sous choc dans le CHOSi.

Aux mêmes instants, on observe que le choc se propage dans le quartz, à droite de l'image VISAR (figure 6.13), ainsi que dans le CHOSi, à gauche de l'image. On mesure la vitesse du choc dans ces deux matériaux juste après la transmission du choc. Les courbes d'Hugoniot (P, U_p) de l'aluminium et du quartz sont connues. La vitesse de choc mesurée dans le quartz détermine l'état du choc sur son Hugoniot. Par essais successifs, on calcule des isentropes de détente à partir de différents états de départ sur l'Hugoniot de l'aluminium. Celui qui restitue le mieux l'état sous choc dans le quartz est choisi comme point de départ pour le calcul de l'isentropes qui déterminera l'état du choc dans le CHOSi. La

figure (6.14) illustre cette méthode de mesure.

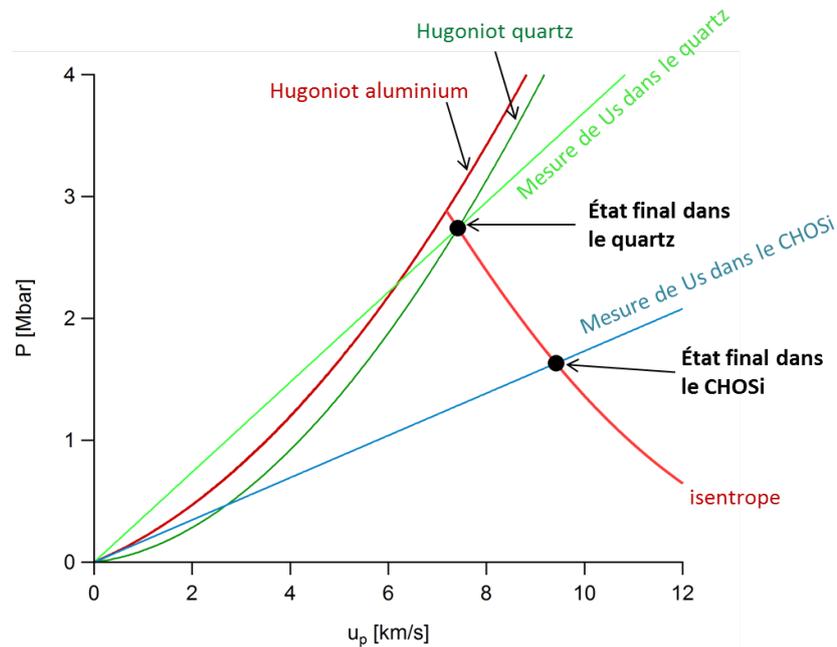


FIGURE 6.14 : Méthode de la désadaptation d'impédance pour une cible composée d'une référence aluminium et quartz.

numéro de tir	U_s^{Al} [km/s]	U_s^{CHOSi} [km/s]
39717	13,947 (0,29)	15,194 (0,29)
39711	16,273 (0,29)	17,881 (0,29)

TABLE 6.4 : Vitesses de choc mesurées de part et d'autre de l'interface entre l'aluminium et le CHOSi. Les valeurs entre parenthèses correspondent aux incertitudes sur la mesure.

Deux cibles de ce type ont été utilisées. Les états (P, ρ) obtenus avec la référence aluminium sont indiqués par des cercles noirs sur la figure (6.12). Les écarts en densité entre les deux méthodes de calcul de l'isentrope sont inférieurs à 1%. Ils sont en accord avec les mesures réalisées à partir de la référence quartz et valident nos simulations de dynamique moléculaire quantique. Nous conservons les états calculés avec la méthode de Knudson et Desjarlais pour le calcul de l'isentrope de détente. Ceux-ci sont relatés dans le tableau (6.5).

6.3.2 Détermination de la Réflectivité et de la température

Réflectivité du front de choc à 532 nm : La réflectivité du front de choc dans le CHOSi est déterminée à partir de l'intensité du faisceau sonde enregistrée sur l'image VISAR. Celle-ci est normalisée par

numéro de tir	U_s [km/s]	U_p [km/s]	P [Mbar]	ρ/ρ_0
37759	18,062 (0,29)	11,543 (0,316)	2,377 (0,071)	2,771 (0,145)
37762	24,865 (0,48)	16,441 (0,571)	4,660 (0,175)	2,952 (0,215)
37826	15,281 (0,29)	9,634 (0,299)	1,678 (0,0571)	2,706 (0,155)
37755	25,859 (0,48)	17,207 (0,579)	5,073 (0,184)	2,989 (0,215)
37816	17,33 (0,29)	11,0134 (0,311)	2,176 (0,067)	2,744 (0,146)
37776	18,594 (0,29)	11,82 (0,318)	2,506 (0,073)	2,745 (0,139)
37778	24,805 (0,48)	16,311 (0,569)	4,612 (0,174)	2,920 (0,210)
39675	14,117 (0,29)	8,659 (0,289)	1,394 (0,051)	2,587 (0,148)
39676	14,066 (0,29)	8,579 (0,288)	1,376 (0,051)	2,564 (0,146)
39685	12,955 (0,29)	7,560 (0,279)	1,122 (0,045)	2,419 (0,136)
39717	15,194 (0,29)	9,418 (0,369)	1,631 (0,066)	2,631 (0,187)
39711	17,881 (0,29)	11,459 (0,371)	2,336 (0,080)	2,784 (0,180)

TABLE 6.5 : Hugoniot du CHO mesurées sur l'installation laser GEKKO XII à partir d'une référence quartz, et aluminium pour les deux derniers tirs.

rapport à l'intensité recueillie sur l'image de référence.

Connaissant la réflectivité initiale de la cible, on peut relier l'intensité du faisceau sonde à la réflectivité du choc dans l'échantillon. Cependant, sur la majorité des tirs effectués, l'intensité du signal VISAR augmente dans le CHOSi lorsque la vitesse de choc diminue. Ce comportement est dû à une modification des propriétés optiques du plastique par un flux de rayons X et d'électrons rapides générés en face avant de la cible. Ces particules sont absorbées par le milieu. Des électrons libres sont créés et absorbent une partie du faisceau sonde. Des variations d'intensité sont alors visibles sur l'image VISAR. Ce phénomène a notamment été observé par Theobald *et al.* [165] sur le polystyrène et par Barrios *et al.* au cours des campagnes sur l'installation Oméga [161]. Quantifier cette atténuation est difficile, ce qui rend les mesures absolues peu fiables.

Dans ce cas, nous estimons la réflectivité du choc dans le CHOSi juste après sa transmission depuis la couche de quartz. On considère alors que l'absorption du faisceau sonde dans le CHOSi est la même de part et d'autre de l'interface. Comme la réflectivité du quartz à 532 nm a été calibrée en fonction de la vitesse du choc (dans le chapitre précédent), on relie directement l'intensité de l'image VISAR à la réflectivité. En notant I_{Qz} et R_{Qz} le rapport d'intensité et la réflectivité absolue équivalente dans le quartz, et I_{CHOSi} le rapport d'intensité après 200 ps environ, ce qui correspond à la résolution temporelle

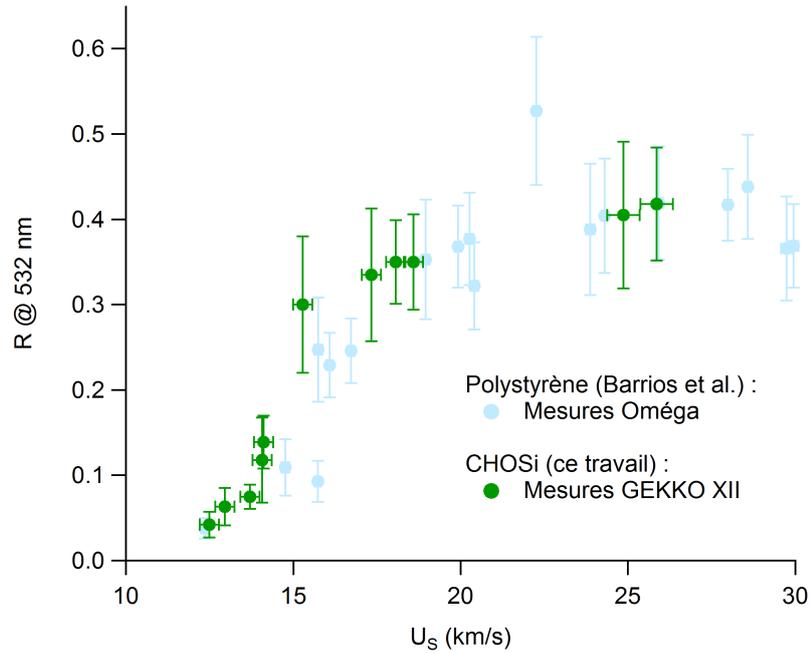


FIGURE 6.15 : Réflectivité à 532 nm du plastique CHOSi en fonction de la vitesse de choc.

du diagnostic, on exprime la réflectivité du choc dans le CHOSi comme :

$$R_{\text{CHOSi}} = \frac{I_{\text{CHOSi}}}{I_{\text{Qz}}} R_{\text{Qz}} - r_{\text{CHOSi/vidé}}, \quad (6.7)$$

où, $r_{\text{CHOSi/vidé}}$ correspond aux réflexions de Fresnel à l'interface entre le CHOSi et le vide.

La figure (6.15) présente les valeurs obtenues en fonction de la vitesse de choc. De la même façon que pour le plastique CHO, on observe une saturation de la réflectivité à 532 nm aux alentours de 40%. Nous considérerons ces mesures pour déterminer la température du choc.

Température du choc : On détermine la température de corps gris équivalente à partir de la relation :

$$T = \frac{T_0}{\ln \left(1 + \frac{1-R}{I_{\text{SOP}}} A \right)}. \quad (6.8)$$

Rappelons que A est une constante de calibration du diagnostic, I_{SOP} le nombre de coups collecté sur la SOP, T la température de corps gris et R la réflectivité du front de choc que nous prendrons à 532 nm.

Du fait de l'absorption observée dans le CHOSi, on utilise les calibrations du quartz en réflectivité $R_{\text{Qz}}(U_s)$ et en température $T_{\text{Qz}}(U_s)$. Ces dernières ont été déterminées à partir des calibrations absolues de la SOP. Dans ce cas, on se place à l'interface entre le quartz et le CHOSi. Les signaux issus du quartz et du CHOSi choqués sont sujet aux mêmes conditions imposées par le diagnostic (chemin optique, sensibilité de la caméra et réponse spectrale du diagnostic). On suppose donc que la constante de calibration

A est la même dans les deux matériaux, ce qui nous permet de l'exprimer en fonction des paramètres du quartz, suivant :

$$A = \frac{I_{Qz}}{(1 - R_{Qz})} \left(e^{T_0/T_{Qz}} - 1 \right) \quad (6.9)$$

On obtient ainsi :

$$T_{CHOSi} = \frac{T_0}{\ln \left[\frac{I_{Qz}}{I_{CHOSi}} \frac{1 - R_{CHOSi}}{1 - R_{Qz}} \left(e^{T_0/T_{Qz}} - 1 \right) + 1 \right]}, \quad (6.10)$$

où (R_{Qz}, I_{Qz}, T_{Qz}) et (R_{CHOSi}, I_{CHOSi}) sont les paramètres du quartz et du CHOSi juste avant et après la transmission du choc de l'un vers l'autre.

L'erreur sur la température est déterminée par la somme quadratique des erreurs provenant de trois sources indépendantes : les calibrations du quartz $R(U_s)$ et $T(U_s)$ (5%), la réflectivité du CHOSi ($\approx 15\%$) et la fluctuation du nombre de coups collectés sur la caméra CCD (5 coups). Nous obtenons ainsi des erreurs comprises entre 15 et 30%. Les résultats obtenus sont indiqués sur la figure (6.16).

Les températures mesurées sont supérieures aux valeurs simulées par la dynamique moléculaire quantique. Les écarts en température sont compris entre 13 et 24%, de l'ordre de grandeur des incertitudes sur la mesure. Les températures obtenues sont néanmoins similaires à celles obtenues par Barrios *et al.* sur le polystyrène.

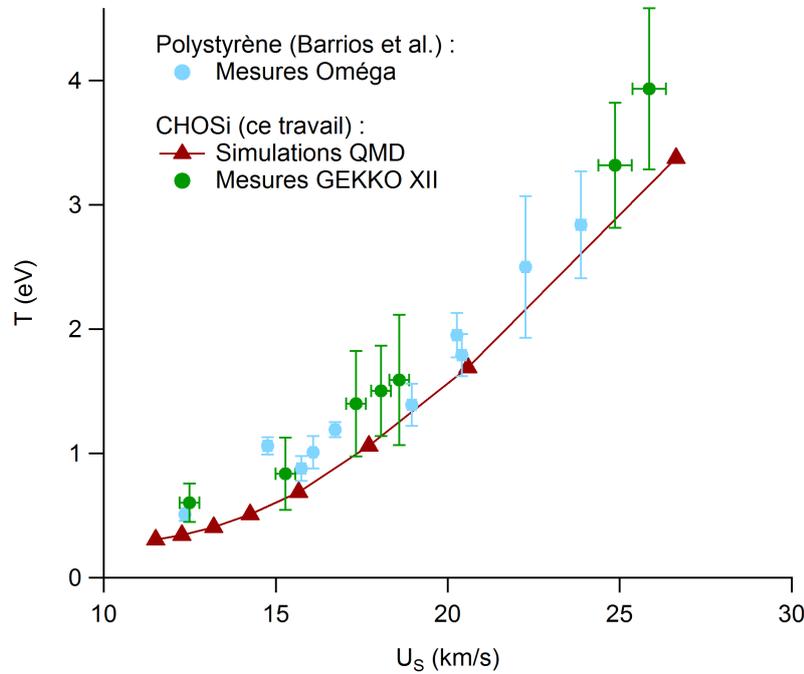


FIGURE 6.16 : Températures mesurées dans le CHOSi par rapport au quartz.

Conclusions :

Nous avons mesuré des états sur l'Hugoniot du plastique CHOSi pour des pressions comprises entre 1 et 6 Mbar.

Deux matériaux de référence ont été utilisés pour déterminer les états (P, ρ) . La majorité des cibles a été dimensionnée à partir d'une référence quartz. Cependant, la présence de franges parasites sur les images VISAR nous a conduit à tester de nouvelles cibles contenant à la fois de l'aluminium et du quartz comme matériaux de référence.

Les résultats obtenus valident nos simulations de dynamique moléculaire quantique dans le plan (P, ρ) .

Des écarts de l'ordre de grandeur des incertitudes sur la mesure sont observés dans le plan (T, U_s) .

6.4 Comparaison des données du CHO et du CHOSi

6.4.1 Propriétés thermodynamiques

Les figures (6.17) et (6.18) présentent les états pression-compression et température-compression mesurés pour le CHO sur l'installation laser LULI2000 et pour le CHOSi sur l'installation GEKKO XII. De la même façon que pour les simulations de dynamique moléculaire quantique, on observe le recouvrement des données du CHO et du CHOSi en compression. Les propriétés thermodynamiques de l'ablateur plastique CHO ne sont donc pas modifiées par l'introduction du silicium en faible quantité (2,4%). Ce dernier agit uniquement sur la densité normale de l'ablateur. Ce résultat est réconfortant en ce qui concerne la construction de la capsule. En effet, le rôle du silicium est d'agir sur les propriétés d'absorption du rayonnement de la cavité de conversion et non pas de modifier l'équation d'état de l'ablateur. De plus, ce résultat est cohérent avec les études réalisées sur un ablateur plastique des capsules du LMJ dopé au germanium CHOGe [159, 100]. Celles-ci ont montré que le taux de dopant (2% ou 13%) n'avait pas d'influence sur la compression.

Nos mesures sont ensuite comparées au modèle d'équation d'état tabulée QEOS. Les pressions et les températures mesurées sont inférieures à ce modèle dans le régime d'étude. Les écarts se réduisent lorsque ces valeurs augmentent, confirmant ainsi l'influence de la dissociation chimique sur l'Hugoniot mise en avant lors des simulations QMD. De plus, les mesures réalisées valident l'Hugoniot extraite du modèle QEOS que nous avons modifié de façon à restituer l'effet de la dissociation.

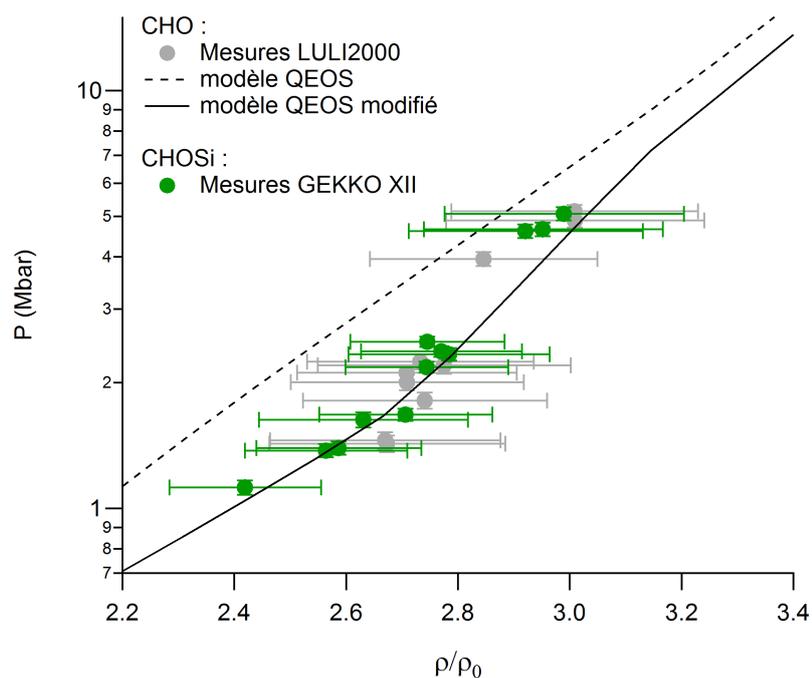


FIGURE 6.17 : Comparaison des mesures du CHO et du CHOSi sur l'Hugoniot dans le plan pression-compression.

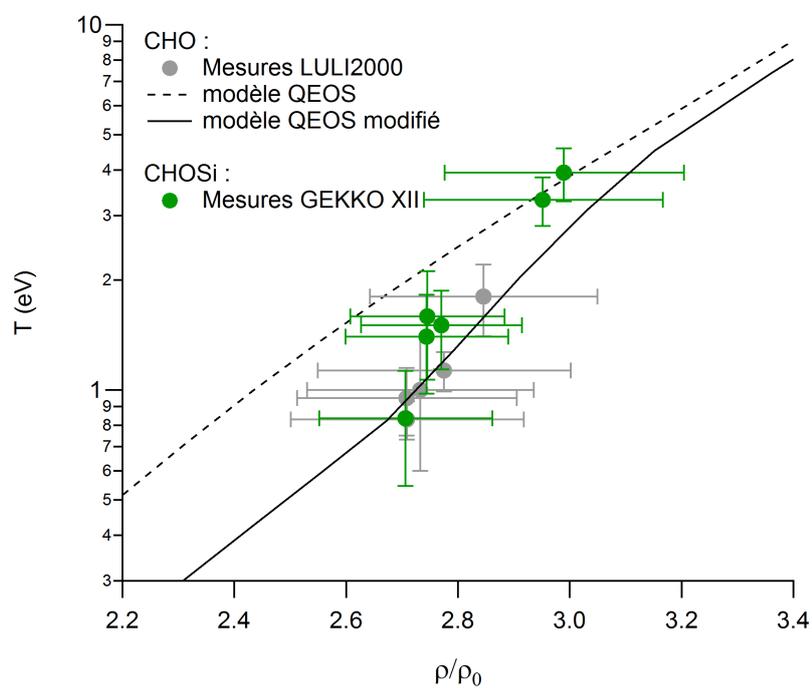


FIGURE 6.18 : Comparaison des mesures du CHO et du CHOSi sur l'Hugoniot dans le plan température-compression.

6.4.2 Propriétés optiques

En plus de la mesure d'états thermodynamiques sur l'Hugoniot des plastiques, nous avons obtenu des données de la réflectivité du front de choc. Ces mesures ont été présentées en fonction de la vitesse de choc et ont essentiellement servi à l'évaluation de la température. Elles ont néanmoins un intérêt vis-à-vis des expériences de fusion par confinement inertiel. En effet, elles dépendent des propriétés électroniques de la matière. Celles-ci jouent un rôle dans les propriétés d'absorption du rayonnement X de la cavité par les couches externes de la capsule, composées des plastiques CHO et CHOSi étudiés ici.

La réflectivité mesurée correspond à la réflectivité du front de choc à l'interface entre le plastique choqué et non choqué. Elle est reliée à l'indice complexe $\tilde{n}(\omega)$ du milieu par la formule :

$$R(\omega) = \frac{[n(\omega) - n_0(\omega)]^2 + [k(\omega) - k_0(\omega)]^2}{[n(\omega) + n_0(\omega)]^2 + [k(\omega) + k_0(\omega)]^2}, \quad (6.11)$$

avec $n(\omega)$ et $k(\omega)$ les parties réelle et imaginaire de l'indice optique complexe $\tilde{n}(\omega) = n(\omega) + i.k(\omega)$. L'indice « 0 » indique l'état initial du plastique dans lequel le choc se propage. La partie imaginaire de l'indice optique, appelée coefficient d'extinction du milieu, prend en compte les effets dus à l'absorbance, la diffusion et la luminescence du matériau.

L'indice optique est relié à la fonction diélectrique complexe $\tilde{\epsilon}(\omega)$ définie par la relation :

$$\tilde{\epsilon}(\omega) = \epsilon_1(\omega) + i.\epsilon_2(\omega) = [n(\omega) + i.k(\omega)]^2, \quad (6.12)$$

avec $\epsilon_1(\omega)$ et $\epsilon_2(\omega)$ ses parties réelle et imaginaire. Ces dernières se déduisent ensuite de la conductivité diélectrique complexe $\tilde{\sigma}(\omega) = \sigma_1(\omega) + i.\sigma_2(\omega)$, par les relations mathématiques de Kramers-Kronig :

$$\epsilon_1(\omega) = 1 - \frac{4\pi}{\omega} \sigma_2(\omega) \quad (6.13)$$

$$\epsilon_2(\omega) = \frac{4\pi}{\omega} \sigma_1(\omega) \quad (6.14)$$

La modélisation de la réflectivité peut ainsi se faire à partir de la conductivité électrique complexe $\tilde{\sigma}(\omega)$. Nous allons comparer nos données expérimentales à des calculs réalisés à l'aide de nos simulations de dynamique moléculaire quantique et de la formule de Kubo-Greenwood.

Calcul de la conductivité à partir de la formule de Kubo-Greenwood [166, 167, 168] : La partie réelle de la conductivité électronique est obtenue à partir des états propres $\varphi_{i,\mathbf{k}}$ et des énergies propres $\epsilon_{i,\mathbf{k}}$ calculés dans le cadre de la DFT, suivant la relation :

$$\sigma_1(\omega) = \frac{2\pi}{3\omega V} \sum_{\mathbf{k}} W(\mathbf{k}) \sum_{j=1}^{N_B} \sum_{i=1}^{N_B} \sum_{\alpha=1}^3 [f(\epsilon_{i,\mathbf{k}}) - f(\epsilon_{j,\mathbf{k}})] |\langle \varphi_{j,\mathbf{k}} | \nabla_{\alpha} | \varphi_{i,\mathbf{k}} \rangle|^2 \delta(\epsilon_{j,\mathbf{k}} - \epsilon_{i,\mathbf{k}} - \omega), \quad (6.15)$$

où $W(\mathbf{k})$ est la pondération du point \mathbf{k} dans la zone de Brillouin, α représente une direction de l'espace dans un repère cartésien (x, y, z) et ∇_α l'opérateur gradient selon la direction α . Les sommations i et j se font sur l'ensemble des N_B états de Kohn-Sham considérés dans le calcul de la DFT. Trois termes interviennent dans la formule de Kubo-Greenwood :

- Le terme $|\langle \varphi_{j,\mathbf{k}} | \nabla_\alpha | \varphi_{i,\mathbf{k}} \rangle|^2$ correspond à la probabilité de transition d'un état i à un état j associée à l'excitation du système électronique. Il est donné par une formule analytique dans le code ABINIT, on n'utilise pas de dérivée.
- Le terme $[f(\varepsilon_{i,\mathbf{k}}) - f(\varepsilon_{j,\mathbf{k}})]$ introduit les taux d'occupation des états i et j donnés par la distribution de Fermi-Dirac. Il interdit alors les transitions entre des bandes déjà peuplées ou vides.
- Le terme $\delta(\varepsilon_{j,\mathbf{k}} - \varepsilon_{i,\mathbf{k}} - \omega)$ assure la conservation de l'énergie. Il est remplacé par une gaussienne dans l'équation (6.15). L'élargissement de la gaussienne doit être choisi avec attention. Celui-ci doit être ni trop petit pour ne pas générer de bruit, ni trop grand pour ne pas perdre de l'information.

La partie imaginaire de la conductivité $\sigma_2(\omega)$ est ensuite déduite de la relation de Kramers-Kronig suivant :

$$\sigma_2(\omega) = -\frac{2}{\pi} P \int \frac{\sigma_1(\nu)\omega}{(\nu^2 - \omega^2)} d\nu. \quad (6.16)$$

L'ensemble des simulations de dynamique moléculaire quantique sont réalisées au point $\Gamma = (0, 0, 0)$ dans la première zone de Brillouin. Cette approximation est suffisante pour calculer les propriétés thermodynamiques des ablateurs mais ne permet pas un calcul précis de la structure électronique nécessaire ici. Par conséquent, nous avons effectué des calculs statiques de DFT avec un échantillonnage $(2 \times 2 \times 2)$ des points \mathbf{k} . Les calculs statiques de DFT ont été réalisés à partir de configurations atomiques prises pour des pressions à l'équilibre sur l'Hugoniot. Les indices optiques obtenus sont moyennés sur quatre configurations. La convergence des calculs a été vérifiée en faisant varier la largeur de la gaussienne δ ainsi que le nombre de bandes considérées.

Comparaison des données de réflectivité : Les mesures de la réflectivité sous choc à 532 nm et 1064 nm sont reportées en fonction de la compression sur la figure (6.19). Pour le plastique CHO, nous disposons de données pour ces deux longueurs d'onde. Seules les valeurs de la réflectivité à 532 nm sont disponibles pour le CHOSi.

En dessous de $2,6 \times \rho_0$ environ, les valeurs obtenues sont relativement basses ($\approx 0,1$). On observe ensuite une augmentation de la réflectivité, puis une saturation à $\approx 0,4$ à 532 nm et à $\approx 0,6$ à 1064 nm.

Ce comportement a déjà été observé sur des matériaux plastiques comme le polystyrène [161] et le plastique CHOGe [100], et indique une transition isolant-semiconducteur-métal due à l'augmentation de la température et à la fermeture du gap.

Notons également que l'augmentation de la réflectivité à $\approx 2,6 \times \rho_0$ correspond à l'augmentation de la pression sur l'Hugoniot qui est attribuée à la dissociation chimique. Lors de la disparition des liaisons, un plus grand nombre d'électrons devient disponible pour la conduction, ce qui entraîne une augmentation de la réflectivité.

De plus, la comparaison des données du CHO et du CHOSi montre que la réflectivité à 532 nm est identique pour ces deux matériaux. Ce résultat indique que les propriétés optiques de l'ablateur des capsules du LMJ ne sont pas modifiées par l'introduction d'atomes de silicium dans sa structure atomique. En outre, Huser *et al.* [100] ont montré que le taux de dopant au germanium (à 2% et à 13%) n'a pas d'effet sur ces mêmes propriétés, ce qui suggère un comportement universel des propriétés optiques des ablateurs plastiques sous choc.

Nous avons ensuite appliqué la formule de Kubo-Greenwood à l'ablateur CHO. Les données obtenues sont présentées sur la figure (6.19). La saturation de la réflectivité est prédite à $\approx 0,43$ à 532 nm et à $\approx 0,55$ à 1064 nm. Ces valeurs sont proches des données expérimentales, les écarts observés étant inférieurs aux incertitudes sur les mesures. Les calculs montrent également une diminution de la réflectivité avec la compression mais se situent au dessus des valeurs expérimentales. Ces écarts peuvent provenir des approximations introduites dans le code ABINIT, comme par exemple l'approximation des électrons indépendants utilisée dans le formalisme de la DFT.

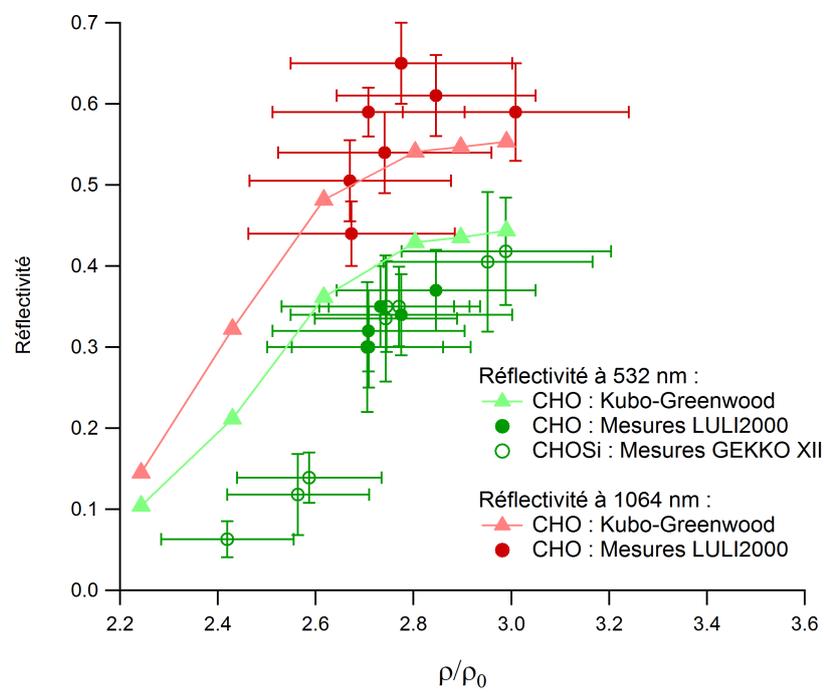


FIGURE 6.19 : Réflectivité sous choc du CHO et du CHOSi en fonction de la compression.

Contexte et objectifs

Afin d'optimiser les processus visant à recréer sur Terre des réactions de fusion thermonucléaire contrôlées dans le cadre d'un confinement inertiel, il est nécessaire de maîtriser de nombreux phénomènes physiques. En particulier, nous nous sommes intéressés aux équations d'état de matériaux ablateurs plastiques. Celles-ci sont utilisées sous formes tabulées dans les codes hydrodynamiques pour dimensionner les expériences de fusion par confinement inertiel. Elles ont un effet important sur la croissance des instabilités hydrodynamiques prédites par ces codes [23], ainsi que sur la chronométrie des chocs dans la capsule [22], et constituent donc un paramètre important de la fusion par confinement inertiel.

Le schéma d'implosion de la capsule, au cours duquel la matière se transforme et passe par plusieurs états thermodynamiques, impose de construire les équations d'état tabulées sur un domaine très étendu du diagramme de phase. Celui-ci est typiquement défini pour des densités comprises entre 10^{-4} et 10^4 fois la densité solide, et des températures comprises entre 0 et 10^9 Kelvin. Différentes modélisations théoriques, décrivant chacune une région spécifique du diagramme de phase, sont alors utilisées. Des méthodes d'interpolation sont ensuite introduites pour décrire les régions intermédiaires. Les modèles utilisés dans les tables font directement intervenir des paramètres expérimentaux, ou bien sont ajustés afin de restituer des données d'équation d'état lorsqu'elles existent.

L'étude proposée dans ce manuscrit associe des analyses numériques et expérimentales. Celles-ci portent sur deux matériaux ablateurs synthétisés pour les coquilles sphériques du Laser Mégajoule : le plastique non dopé et le plastique dopé au silicium à 2,4%at, que nous appelons respectivement CHO et CHOSi.

Nous nous sommes concentrés dans une région restreinte du diagramme de phase connue sous le nom de matière dense et tiède. Ce régime de plasma est difficile à étudier puisqu'il combine des aspects

de la matière chaude, tels que l'ionisation et le comportement fluide, et des aspects de la matière froide, comme la dégénérescence des électrons. De plus, il se trouve à la frontière des différentes modélisations théoriques. Des interpolations et des corrections semi-empiriques sont alors utilisées mais ne fournissent qu'une estimation approchée des propriétés thermodynamiques. Il est donc particulièrement intéressant d'obtenir des données numériques et expérimentales dans ce régime.

Nous avons limité notre étude de la matière dense et tiède à un domaine thermodynamique qui peut être atteint sur des installations laser de taille moyenne, et notamment les installations LULI2000 à Palaiseau et GEKKO XII situé à Osaka au Japon. Ces dernières ont été utilisées, durant ce travail de recherche, pour mesurer des pressions, des densités et des températures des deux matériaux ablateurs sous choc. Le domaine étudié est défini par des pressions de quelques mégabars et des températures de quelques électronvolts. Il est pertinent vis-à-vis de la fusion par confinement inertiel puisqu'il correspond aux conditions atteintes lors des premières phases de l'implosion de la capsule.

Travail réalisé et conclusions

Modèle d'équation d'état : Nous avons choisi un modèle analytique pour construire l'équation d'état tabulée des ablateurs. Nous choisissons nous sommes portés sur le modèle QEOS [45] qui fournit une méthode pour construire l'équation d'état de n'importe quel mélange. Ce modèle est entièrement analytique et paramétrable, permettant ainsi des modifications dans le domaine d'étude. Les grandeurs thermodynamiques comme, la pression et l'énergie interne, sont obtenues de trois contributions additives calculées séparément. Les deux premières correspondent aux contributions thermiques des ions et des électrons traitées dans le cadre de l'atome moyen. La dernière est une courbe froide qui introduit les effets dus aux liaisons chimiques qui ne sont pas pris en compte dans les précédents modèles. Nous avons ainsi été particulièrement attentifs aux effets de la dissociation chimique sur les équations d'état des ablateurs.

Analyses numériques : Nous avons ensuite utilisé une méthode de dynamique moléculaire quantique pour simuler des états thermodynamiques dans le régime d'étude. Cette méthode de simulation ne nécessite pas de connaître à l'avance l'état du système pour des conditions thermodynamiques données, et permet de simuler un ensemble d'atomes en interaction. Les électrons sont traités de manière quantique dans le cadre de la théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT). Les forces interatomiques sont ainsi déterminées précisément et servent de paramètre à la dynamique moléculaire classique. Nous avons choisi la formulation de Kohn-Sham de la DFT qui se base sur une description orbitale de l'atome, et permet une prise en compte des liaisons chimiques.

Cette méthode a été appliquée aux ablateurs CHO et CHOSi. Le code de calcul ABINIT a été utilisé sur le supercalculateur Téra100 du CEA/DAM.

En premier lieu, nous nous sommes intéressés à la courbe froide. Cette courbe correspond à une relation pression-densité que nous définissons à température ambiante. Nous avons développé une méthodologie pour la simuler dans un régime de densités comprises entre de la densité solide des ablateurs et 10 fois cette valeur. La méthode numérique a été mise au point sur l'ablateur CHO, puis validée au moyen de mesures expérimentales réalisées dans des cellules à enclume diamant, jusqu'à une pression de 50 GPa. La courbe froide simulée à l'aide de la dynamique moléculaire quantique a finalement été intégrée dans le modèle QEOS. Par la suite, nous avons généré une seconde isotherme à 300 K pour une composition $\text{CH}_{1,50}$ sans oxygène. Nous avons ainsi pu montrer que la présence d'oxygène dans la structure du CHO n'affecte pas les propriétés de compression de cet ablateur pour des densités inférieures à 5 fois la densité solide. Enfin, nous avons déduit une courbe froide pour le CHOSi à partir de celle calculée pour le CHO et d'un redimensionnement de la densité.

En second lieu, nous avons construit les courbes d'Hugoniot des ablateurs CHO et CHOSi étant donné qu'elles constituent la seule partie du diagramme de phase accessible sur les installations laser et permettent ainsi une validation expérimentale. Nous nous sommes particulièrement intéressés aux états thermodynamiques atteints sur les deux installations laser déjà évoquées et qui correspondent à des densités comprises entre 2,4 et 3,4 fois la densité solide. Les simulations de dynamique moléculaire quantique ont mis en défaut le modèle semi-empirique QEOS. Des écarts importants sur les courbes d'Hugoniot dans les plans pression-densité et température-densité ont été observés. Pour une densité donnée, ces écarts vont jusqu'à 1 Mbar en pression et 1 eV en température. L'analyse de la structure atomique des systèmes simulés nous a permis d'attribuer ces écarts à la dissociation chimique.

Enfin, nous avons adapté le modèle QEOS pour restituer nos simulations le long de l'Hugoniot des ablateurs étudiés. Pour cela, nous avons déterminé une forme analytique au coefficient de Grüneisen qui fixe la contribution thermique des ions. Ces valeurs ont été ajustées, à chaque densité, pour que la pression totale (composée de la contribution thermique des ions, à laquelle s'ajoute celle des électrons et la courbe froide) restitue les simulations sur l'Hugoniot dans le plan (P, ρ) .

Analyses expérimentales : Suite à ce travail de simulation, nous avons validé notre démarche par une méthode expérimentale. Pour cela, nous avons réalisé des séries de mesures sur les installations laser LULI2000 et GEKKO XII. Celles-ci portent sur les états de pression, de densité, de température et de la réflectivité sur l'Hugoniot des ablateurs CHO et CHOSi.

Pour commencer, nous avons présenté les phénomènes physiques qui régissent la compression par

choc, ainsi que les diagnostics utilisés pour sonder la matière sous choc. Les caractéristiques des deux installations laser et le dimensionnement des cibles ont alors été abordés.

Ensuite, nous avons présenté les méthodes d'analyses ainsi que les résultats obtenus au cours de trois campagnes expérimentales sur les deux installations laser. Nos données sont en accord avec de précédentes mesures réalisées sur l'installation laser Oméga sur du polystyrène, de composition chimique proche de nos ablateurs, ainsi que sur l'ablateur non dopé des capsules NIF. De plus, elles valident nos simulations de dynamique moléculaire quantique.

Nous avons enfin montré que les données d'équation d'état et de réflectivité sur l'Hugoniot, tracées en fonction de la compression, sont identiques pour les deux ablateurs étudiés ici. Ce résultat est cohérent avec les études réalisées sur le CHOGe [159, 100] et indique que le taux de dopant (Si ou Ge) n'a pas d'influence sur la compression.

Application aux conditions de la FCI

Nous disposons ainsi d'une équation d'état tabulée pour les ablateurs des capsules du Laser Mégajoule qui est utilisable dans un code hydrodynamique. Afin d'observer les effets de la dissociation sur l'implosion d'une capsule de FCI, nous considérons une couche de CHO d'une épaisseur de 500 μm . On simule ensuite la propagation des chocs générés à l'aide d'un profil de température radiative typique du Laser Mégajoule [169]. Les simulations sont réalisées sur le code hydrodynamique CHIVAS.

La figure (7.1) présente les profils de pression prélevés à deux endroits dans la couche de CHO de façon à observer le premier et le deuxième choc ainsi que leur coalescence. Elles ont été effectuées pour deux équations d'état différentes. Tout d'abord, la table QEOS a été utilisée. Les pressions obtenues sont indiquées en rose sur la figure. Ensuite, nous avons introduit la table QEOS qui a été modifiée sur les simulations de dynamique moléculaire quantique afin d'introduire les effets de la dissociation chimique sur l'Hugoniot. Les pressions obtenues sont indiquées en bleu.

Ces simulations montrent des différences sur la synchronisation des chocs. Par exemple, le modèle QEOS modifié prédit le premier choc 300 ps environ plus tard et le deuxième choc 300 ps plus précoce que le modèle QEOS. De plus, la coalescence de ces deux chocs se produit 600 ps plus tôt.

Bien que ne fournissant qu'un aperçu simplifié du séquençage des chocs dans une capsule de FCI¹, ce test nous donne une bonne approximation des effets attendus sur une simulation à l'échelle 1. En particulier, les décalages temporels issus des deux tables d'équation d'état sont supérieurs à la

1. En effet, les simulations 1D réalisées ici ne tiennent pas compte des effets de convergence dans une capsule. De plus, la coalescence doit se produire dans le deutérium-tritium sous phase gazeuse proche de l'interface en contact avec le deutérium-tritium sous phase cryogénique et non pas dans l'ablateur [8].

tolérance de 50 – 100 ps acceptée pour atteindre l’ignition que nous avons évoquée dans l’introduction de ce manuscrit.

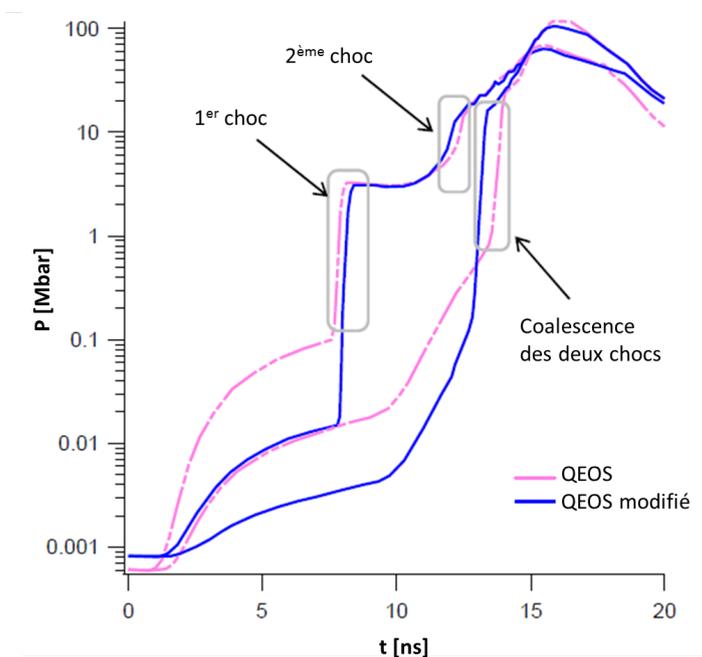


FIGURE 7.1 : Synchronisation de deux chocs dans une cible monodimensionnelle de 500 μm d’épaisseur composée de l’ablateur CHO. La simulation a été réalisée à l’aide du code hydrodynamique CHIVAS, avec un profil de puissance laser typique du LMJ. Les profils de pression sont prélevés à une distance de 150 μm et 250 μm dans la couche de CHO.

Perspectives

À court terme, cette étude peut être complétée en synthétisant les résultats expérimentaux et numériques de tous les matériaux ablateurs décrits ici et dans les publications précédentes. Ainsi, de la même façon que nous avons montré des propriétés équivalentes en compression entre les ablateurs CHO et CHOSi, des propriétés universelles peuvent être déterminées pour décrire l’ensemble des matériaux ablateurs.

À plus long terme, nous pouvons étendre cette étude à des états plus comprimés, pour un domaine de pressions supérieures à 10 Mbar. Des simulations peuvent être réalisées à l’aide de la dynamique moléculaire sans orbitale [114, 81]. De plus, l’utilisation d’une installation laser plus puissante, comme le Laser Mégajoule, permet d’atteindre expérimentalement ce domaine.

Il serait également intéressant de tester la description des états thermodynamiques en dehors de l’Hugoniot principale. Dans ce sens, nous pouvons étudier la coalescence des chocs dans l’ablateur en

bénéficiant du modèle d'équation d'état que nous avons développé et en cherchant à contourner les problèmes d'opacification rencontrés lors des premières expériences sur ce thème [6]. Plusieurs chocs peuvent être générés dans une cible en dimensionnant le profil d'irradiation laser. La mesure des vitesses de chocs au cours de l'expérience permet alors une comparaison avec des prédictions numériques issues d'un code hydrodynamique et d'un modèle d'équation d'état tabulée. La faisabilité de cette étude a été montrée par T. Boehly [22] sur du deutérium liquide puis éprouvée sur le NIF [9] mais sans jamais vérifier le séquençement des chocs dans la couche d'ablateur.

Bibliographie

- [1] J. D Lawson. Some criteria for a power producing thermonuclear reactor. Technical report, Atomic Energy Research Establishment, Harwell, Berkshire, U. K, 1955.
- [2] F. Wagner, G. Becker, K. Behringer, D. Campbell, A. Eberhagen, W. Engelhardt, G. Fussmann, O. Gehre, J. Gernhardt, G. v. Gierke, G. Haas, M. Huang, F. Karger, M. Keilhacker, O. Klüber, M. Kornherr, K. Lackner, G. Lisitano, G. G. Lister, H. M. Mayer, D. Meisel, E. R. Müller, H. Murmann, H. Niedermeyer, W. Poschenrieder, H. Rapp, H. Röhr, F. Schneider, G. Siller, E. Speth, A. Stäbler, K. H. Steuer, G. Venus, O. Vollmer, and Z. Yü. Regime of improved confinement and high beta in neutral-beam-heated divertor discharges of the asdex tokamak. *Phys. Rev. Lett.*, 49 :1408–1412, Nov 1982.
- [3] C. Colin, Y. Durand, F. Floux, D. Guyot, and P. Langer. Étude expérimentale du plasma crée par laser sur une cible cryogénique. *Journal de Physique Colloques*, 29(C3) :C3–59–C3–62, 1968.
- [4] N.G. Basov, P. Kriukov, S. Zakharov, Yu. Senatsky, and S. Tchekalin. Experiments on the observation of neutron emission at a focus of high-power laser radiation on a lithium deuteride surface. *Quantum Electronics, IEEE Journal of*, 4(11) :864–867, Nov 1968.
- [5] J. Nuckolls, J. Emmet, and L. Wood. Laser-induced thermonuclear fusion. *Physics Today*, 26 :46, 1973.
- [6] Grégoire Debras. *Etude expérimentale du séquençement des chocs pour la Fusion par Confinement Inertiel*. Archives-ouvertes.fr, 2012.
- [7] O. L. Landen, J. Edwards, S. W. Haan, H. F. Robey, J. Milovich, B. K. Spears, S. V. Weber, D. S. Clark, J. D. Lindl, B. J. MacGowan, E. I. Moses, J. Atherton, P. A. Amendt, T. R. Boehly, D. K.

- Bradley, D. G. Braun, D. A. Callahan, P. M. Celliers, G. W. Collins, E. L. Dewald, L. Divol, J. A. Frenje, S. H. Glenzer, A. Hamza, B. A. Hammel, D. G. Hicks, N. Hoffman, N. Izumi, O. S. Jones, J. D. Kilkenny, R. K. Kirkwood, J. L. Kline, G. A. Kyrala, M. M. Marinak, N. Meezan, D. D. Meyerhofer, P. Michel, D. H. Munro, R. E. Olson, A. Nikroo, S. P. Regan, L. J. Suter, C. A. Thomas, and D. C. Wilson. Capsule implosion optimization during the indirect-drive national ignition campaign. *Physics of Plasmas*, 18(5) :051002, 2011.
- [8] David H. Munro, Peter M. Celliers, Gilbert W. Collins, David M. Gold, Luiz B. Da Silva, Steven W. Haan, Robert C. Cauble, Bruce A. Hammel, and Warren W. Hsing. Shock timing technique for the national ignition facility. *Physics of Plasmas*, 8(5) :2245–2250, 2001.
- [9] H. F. Robey, T. R. Boehly, P. M. Celliers, J. H. Eggert, D. Hicks, R. F. Smith, R. F. Collins, M. W. Bowers, K. G. Krauter, P. S. Datte, and et al. Shock timing experiments on the national ignition facility : Initial results and comparison with simulation. *Physics of Plasmas*, 19 :042706, 2012.
- [10] J. D. Lindl, P. Amendt, R. L. Berger, S. G. Glendinning, S. H. Glenzer, S. W. Haan, R. L. Kauffman, O. L. Landen, and L. J. Suter. The physics basis for ignition using indirect-drive targets on the national ignition facility. *Physics of Plasmas*, 11(339), 2004.
- [11] Shinsuke Fujioka, Atsushi Sunahara, Katsunobu Nishihara, Naofumi Ohnishi, Tomoyuki Johzaki, Hiroyuki Shiraga, Keisuke Shigemori, Mitsuo Nakai, Tadashi Ikegawa, Masakatsu Murakami, Keiji Nagai, Takayoshi Norimatsu, Hiroshi Azechi, and Tatsuhiko Yamanaka. Suppression of the rayleigh-taylor instability due to self-radiation in a multiablation target. *Phys. Rev. Lett.*, 92 :195001, May 2004.
- [12] S. X. Hu, G. Fiksel, V. N. Goncharov, S. Skupsky, D. D. Meyerhofer, and V. A. Smalyuk. Mitigating laser imprint in direct-drive inertial confinement fusion implosions with high- z dopants. *Phys. Rev. Lett.*, 108 :195003, May 2012.
- [13] G. Fiksel, S. X. Hu, V. A. Goncharov, D. D. Meyerhofer, T. C. Sangster, V. A. Smalyuk, B. Yaakobi, M. J. Bonino, and R. Jungquist. Experimental reduction of laser imprinting and rayleigh-taylor growth in spherically compressed, medium- z -doped plastic targets. *Physics of Plasmas*, 19(6) :062704, 2012.
- [14] D. G. Hicks, N. B. Meezan, E. L. Dewald, A. J. Mackinnon, R. E. Olson, D. A. Callahan, T. Doppner, L. R. Benedetti, D. K. Bradley, P. M. Celliers, D. S. Clark, P. Di Nicola, S. N. Dixit, E. G. Dzenitis, J. E. Eggert, D. R. Farley, J. A. Frenje, S. M. Glenn, S. H. Glenzer, A. V. Hamza, R. F.

- Heeter, J. P. Holder, N. Izumi, D. H. Kalantar, S. F. Khan, J. L. Kline, J. J. Kroll, G. A. Kyrala, T. Ma, A. G. MacPhee, J. M. McNaney, J. D. Moody, M. J. Moran, B. R. Nathan, A. Nikroo, Y. P. Opachich, R. D. Petrasso, R. R. Prasad, J. E. Ralph, H. F. Robey, H. G. Rinderknecht, J. R. Rygg, J. D. Salmonson, M. B. Schneider, N. Simanovskaia, B. K. Spears, R. Tommasini, K. Widmann, A. B. Zylstra, G. W. Collins, O. L. Landen, J. D. Kilkenny, W. W. Hsing, B. J. MacGowan, L. J. Atherton, and M. J. Edwards. Implosion dynamics measurements at the national ignition facility. *Physics of Plasmas*, 19(12) :122702, 2012.
- [15] T. R. Dittrich, S. W. Haan, M. M. Marinak, S. M. Pollaine, and R. McEachern. Reduced scale national ignition facility capsule design. *Physics of Plasmas*, 5(10) :3708–3713, 1998.
- [16] S. W. Haan, M. C. Herrmann, T. R. Dittrich, A. J. Fetterman, M. M. Marinak, D. H. Munro, S. M. Pollaine, J. D. Salmonson, G. L. Strobel, and L. J. Suter. Increasing robustness of indirect drive capsule designs against short wavelength hydrodynamic instabilities. *Physics of Plasmas*, 12(5) :056316, 2005.
- [17] Daniel S. Clark, Steven W. Haan, Bruce A. Hammel, Jay D. Salmonson, Debra A. Callahan, and Richard P. J. Town. Plastic ablator ignition capsule design for the national ignition facility. *Physics of Plasmas*, 17(5) :052703, 2010.
- [18] B. A. Hammel, H. A. Scott, S. P. Regan, C. Cerjan, D. S. Clark, M. J. Edwards, R. Epstein, S. H. Glenzer, S. W. Haan, N. Izumi, J. A. Koch, G. A. Kyrala, O. L. Landen, S. H. Langer, K. Peterson, V. A. Smalyuk, L. J. Suter, and D. C. Wilson. Diagnosing and controlling mix in national ignition facility implosion experiments a). *Physics of Plasmas*, 18(5) :056310, 2011.
- [19] S. W. Haan, J. D. Lindl, D. A. Callahan, D. S. Clark, J. D. Salmonson, B. A. Hammel, L. J. Atherton, R. C. Cook, M. J. Edwards, S. Glenzer, A. V. Hamza, S. P. Hatchett, M. C. Herrmann, D. E. Hinkel, D. D. Ho, H. Huang, O. S. Jones, J. Kline, G. Kyrala, O. L. Landen, B. J. MacGowan, M. M. Marinak, D. D. Meyerhofer, J. L. Milovich, K. A. Moreno, E. I. Moses, D. H. Munro, A. Nikroo, R. E. Olson, K. Peterson, S. M. Pollaine, J. E. Ralph, H. F. Robey, B. K. Spears, P. T. Springer, L. J. Suter, C. A. Thomas, R. P. Town, R. Vesey, S. V. Weber, H. L. Wilkens, and D. C. Wilson. Point design targets, specifications, and requirements for the 2010 ignition campaign on the national ignition facility. *Physics of Plasmas*, 18(5) :051001, 2011.
- [20] C Cherfils-Clérouin, C Boniface, M Bonnefille, E Dattolo, D Galmiche, P Gauthier, J Giorla, S Laffite, S Liberatore, P Loiseau, G Malinie, L Masse, P E Masson-Laborde, M C Monteil,

- F Poggi, P Seytor, F Wagon, and J L Willien. Progress on Imj targets for ignition. *Plasma Physics and Controlled Fusion*, 51(12) :124018, 2009.
- [21] O L Landen, R Benedetti, D Bleuel, T R Boehly, D K Bradley, J A Caggiano, D A Callahan, P M Celliers, C J Cerjan, D Clark, G W Collins, E L Dewald, S N Dixit, T Doepfner, D Edgell, J Eggert, D Farley, J A Frenje, V Glebov, S M Glenn, S H Glenzer, S W Haan, A Hamza, B A Hammel, C A Haynam, J H Hammer, R F Heeter, H W Herrmann, D G Hicks, D E Hinkel, N Izumi, M Gatu Johnson, O S Jones, D H Kalantar, R L Kauffman, J D Kilkenny, J L Kline, J P Knauer, J A Koch, G A Kyrala, K LaFortune, T Ma, A J Mackinnon, A J Macphee, E Mapoles, J L Milovich, J D Moody, N B Meezan, P Michel, A S Moore, D H Munro, A Nikroo, R E Olson, K Opachich, A Pak, T Parham, P Patel, H-S Park, R P Petrasso, J Ralph, S P Regan, B A Remington, H G Rinderknecht, H F Robey, M D Rosen, J S Ross, J D Salmonson, T C Sangster, M B Schneider, V Smalyuk, B K Spears, P T Springer, L J Suter, C A Thomas, R P J Town, S V Weber, P J Wegner, D C Wilson, K Widmann, C Yeamans, A Zylstra, M J Edwards, J D Lindl, L J Atherton, W W Hsing, B J MacGowan, B M Van Wonterghem, and E I Moses. Progress in the indirect-drive national ignition campaign. *Plasma Physics and Controlled Fusion*, 54(12) :124026, 2012.
- [22] T. R. Boehly, V. N. Goncharov, W. Seka, S. X. Hu, J. A. Marozas, D. D. Meyerhofer, P. M. Celliers, D. G. Hicks, M. A. Barrios, D. Fratanduono, and G. W. Collins. Multiple spherically converging shock waves in liquid deuterium. *Physics of Plasmas*, 18(9) :092706, 2011.
- [23] Daniel S. Clark, Steven W. Haan, Bruce A. Hammel, Jay D. Salmonson, Debra A. Callahan, and Richard P. J. Town. Plastic ablator ignition capsule design for the national ignition facility. *Physics of Plasmas*, 17(5) :052703, 2010.
- [24] E. Loomis, D. Braun, S. Batha, C. Sorce, and O. Landen. Areal density evolution of isolated surface perturbations at the onset of x-ray ablation Richtmyer-Meshkov growth. *Physics of Plasmas*, 18 :092702, 2011.
- [25] R. Cauble, L. B. Da Silva, T. S. Perry, D. R. Bach, K. S. Budil, P. Celliers, G. W. Collins, A. Ng, T. W. Barbee, Jr., B. A. Hammel, N. C. Holmes, J. D. Kilkenny, R. J. Wallace, G. Chiu, and N. C. Woolsey. Absolute measurements of the equations of state of low-z materials in the multi-mbar regime using laser-driven shocks. *Physics of Plasmas*, 4(5) :1857–1861, 1997.
- [26] Michel Koenig, Franck Philippe, Alessandra Benuzzi-Mounaix, Dimitri Batani, Micaela Toma-

- sini, Emeric Henry, and Tom Hall. Optical properties of highly compressed polystyrene using laser-driven shockwaves. *Physics of Plasmas*, 10(7) :3026–3029, 2003.
- [27] N. Ozaki, T. Sano, M. Ikoma, K. Shigemori, T. Kimura, K. Miyanishi, T. Vinci, F. H. Ree, H. Azechi, T. Endo, Y. Hironaka, Y. Hori, A. Iwamoto, T. Kadono, H. Nagatomo, M. Nakai, T. Norimatsu, T. Okuchi, K. Otani, T. Sakaiya, K. Shimizu, A. Shiroshita, A. Sunahara, H. Takahashi, and R. Kodama. Shock Hugoniot and temperature data for polystyrene obtained with quartz standard. *Physics of Plasmas*, 16(6) :062702, 2009.
- [28] M. A. Barrios, D. G. Hicks, T. R. Boehly, D. E. Fratanduono, J. H. Eggert, P. M. Celliers, G. W. Collins, and D. D. Meyerhofer. High-precision measurements of the equation of state of hydrocarbons at 1–10 mbar using laser-driven shock waves. *Physics of Plasmas*, 17(5) :056307, 2010.
- [29] M. Koenig, A. Benuzzi, B. Faral, J. Krishnan, J. M. Boudenne, T. Jalinaud, C. Raymond, A. Decoster, D. Batani, D. Beretta, and T. A. Hall. Brominated plastic equation of state measurements using laser driven shocks. *Applied Physics Letters*, 72(9) :1033–1035, 1998.
- [30] M. A. Barrios, T. R. Boehly, D. G. Hicks, D. E. Fratanduono, J. H. Eggert, G. W. Collins, and D. D. Meyerhofer. Precision equation-of-state measurements on national ignition facility ablator materials from 1 to 12 mbar using laser-driven shock waves. *Journal of Applied Physics*, 111(9) :093515, 2012.
- [31] G. Huser, N. Ozaki, T. Sano, Y. Sakawa, K. Miyanishi, G. Salin, Y. Asaumi, M. Kita, Y. Kondo, K. Nakatsuka, H. Uranishi, T. Yang, N. Yokoyama, D. Galmiche, and R. Kodama. Hugoniot and mean ionization of laser-shocked ge-doped plastic. *Physics of Plasmas*, 20(12) :122703, 2013.
- [32] Flavien Lambert and Vanina Recoules. Plastic ablator and hydrodynamic instabilities : A first-principles set of microscopic coefficients. *Phys. Rev. E*, 86 :026405, Aug 2012.
- [33] D. V. Knyazev and P. R. Levashov. Ab initio calculation of thermodynamic, transport, and optical properties of CH_2 plastics. *Physics of Plasmas*, 22(5) :053303, 2015.
- [34] Cong Wang, Xian-Tu He, and Ping Zhang. Thermophysical properties for shock compressed polystyrene. *Physics of Plasmas*, 18(8) :082707, 2011.
- [35] S. X. Hu, T. R. Boehly, and L. A. Collins. Properties of warm dense polystyrene plasmas along the principal Hugoniot. *Phys. Rev. E*, 89 :063104, Jun 2014.

- [36] Sebastien Hamel, Lorin X. Benedict, Peter M. Celliers, M. A. Barrios, T. R. Boehly, G. W. Collins, Tilo Döppner, J. H. Eggert, D. R. Farley, D. G. Hicks, J. L. Kline, A. Lazicki, S. LePape, A. J. Mackinnon, J. D. Moody, H. F. Robey, Eric Schwegler, and Philip A. Sterne. Equation of state of $\text{ch}_{1.36}$: First-principles molecular dynamics simulations and shock-and-release wave speed measurements. *Phys. Rev. B*, 86 :094113, Sep 2012.
- [37] J.-F. Danel and L. Kazandjian. Equation of state of a dense plasma by orbital-free and quantum molecular dynamics : Examination of two isothermal-isobaric mixing rules. *Phys. Rev. E*, 91 :013103, Jan 2015.
- [38] S. X. Hu, L. A. Collins, V. N. Goncharov, J. D. Kress, R. L. McCrory, and S. Skupsky. First-principles equation of state of polystyrene and its effect on inertial confinement fusion implosions. *Phys. Rev. E*, 92 :043104, Oct 2015.
- [39] S. Mazevet, J. D. Kress, L. A. Collins, and P. Blottiau. Quantum molecular-dynamics study of the electrical and optical properties of shocked liquid nitrogen. *Phys. Rev. B*, 67 :054201, Feb 2003.
- [40] Yann Laudernet, Jean Clérouin, and Stéphane Mazevet. *Ab initio* simulations of the electrical and optical properties of shock-compressed SiO_2 . *Phys. Rev. B*, 70 :165108, Oct 2004.
- [41] J. Clérouin, Y. Laudernet, V. Recoules, and S. Mazevet. *Ab initio* study of the optical properties of shocked LiF . *Phys. Rev. B*, 72 :155122, Oct 2005.
- [42] G. Norman, I. Saitov, V. Stegailov, and P. Zhilyaev. *Ab initio* calculation of shocked xenon reflectivity. *Phys. Rev. E*, 91 :023105, Feb 2015.
- [43] R. M. More, K. H. Warren, D. A. Young, and G. B. Zimmerman. A new quotidian equation of state (qeos) for hot dense matter. *Physics of Fluids*, 31(10) :3059–3078, 1988.
- [44] Tech. Rep. LA-UR-92-3407, Los Alamos National Laboratory (1992).
- [45] R. M. More, K. H. Warren, D. A. Young, and G. B. Zimmerman. A new quotidian equation of state (qeos) for hot dense matter. *Physics of Fluids (1958-1988)*, 31(10) :3059–3078, 1988.
- [46] Jean-Paul Poirier. *Introduction to the Physics of the Earth's Interior, Second Edition*. Cambridge University Press, 2009.
- [47] F. A. Lindemann. *Z. Physik*, 11, 1910.
- [48] M. Ross. Generalized lindemann melting law. *Phys. Rev.*, 184 :233–242, August 1969.

- [49] F. Dowell. A simple eos for linear (high-density) polyethylene (marlex). Technical report, LA-9564-MS, Los Alamos National Laboratory, 1982.
- [50] K. S. Holian. T-4 handbook of material properties data bases. Technical report, LA-10160-MS, Los Alamos National Laboratory, 1984.
- [51] W. J. Dowell and S. P. Marsh. Hugoniot equation of state of polymers. Technical report, LA-13006-MS, Los Alamos National Laboratory, 1995.
- [52] Robin Piron. *Variational Average-Atom in Quantum Plasmas, VAAQP*. PhD thesis, Ecole Polytechnique, 2004.
- [53] J. F. Barnes. Statistical atom theory and the eos of solids. *Phys. Rev.*, 153 :269, Apr 1967.
- [54] David A. Liberman. Inferno : A better model of atoms in dense plasmas. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 27(3) :335 – 339, 1982.
- [55] R. Piron and T. Blenski. Variational-average-atom-in-quantum-plasmas (vaaqp) code and virial theorem : Equation-of-state and shock-hugoniot calculations for warm dense al, fe, cu, and pb. *Phys. Rev. E*, 83 :026403, Feb 2011.
- [56] D. A. Young and E. M. Corey. A new global equation of state model for hot matter. *J. Appl. Phys.*, 78(6) :3748, 1995.
- [57] D. Gilles, F. Lambert, J. Cl rouin, and G. Salin. Yukawa monte carlo and orbital free molecular dynamics approaches for the equation of state and structural properties of hot dense matter. *High Energy Density Physics*, 3(1) :95 – 98, 2007. Radiative Properties of Hot Dense Matter.
- [58] R. Car and M. Parrinello. Unified approach for molecular dynamics and density-functional theory. *Phys. Rev. Lett.*, 55 :2471–2474, Nov 1985.
- [59] L. Collins, I. Kwon, and J. Kess. Quantum molecular dynamics simulations of hot, dense hydrogen. *Phys. Rev. E*, 52 :6202, Dec 1995.
- [60] J. Cl rouin, Y. Laudernet, and V. Recoules. Ab initio study of the optical properties of shocked lif. *Phys. Rev. B*, 72 :155122, Oct 2005.
- [61] Y. Laudernet and J. Cl rouin. Ab initio simulations of the electrical and optical properties of shock-compressed sio₂. *Phys. Rev. B*, 70 :165108, Oct 2004.

- [62] D. V. Minakov, P. R. Levashov, K. V. Khishchenko, and V. E. Fortov. Quantum molecular dynamics simulation of shock-wave experiments in aluminum. *Journal of Applied Physics*, 115(22) :223512, 2014.
- [63] S. Mazevet, M. P. Desjarlais, L. A. Collins, J. D. Kress, and N. H. Magee. Simulations of the optical properties of warm dense aluminum. *Phys. Rev. E*, 71 :016409, Jan 2005.
- [64] J. Bouchet, F. Bottin, G. Jomard, and G. Zérah. Melting curve of aluminum up to 300 gpa obtained through *ab initio* molecular dynamics simulations. *Phys. Rev. B*, 80 :094102, Sep 2009.
- [65] Jiayu Dai, Yong Hou, and Jianmin Yuan. Unified first principles description from warm dense matter to ideal ionized gas plasma : Electron-ion collisions induced friction. *Phys. Rev. Lett.*, 104 :245001, Jun 2010.
- [66] David E. Hanson, Lee A. Collins, Joel D. Kress, and Michael P. Desjarlais. Calculations of the thermal conductivity of national ignition facility target materials at temperatures near 10 ev and densities near 10 g/cc using finite-temperature quantum molecular dynamics. *Physics of Plasmas*, 18(8) :082704, 2011.
- [67] Jiayu Dai, Yong Hou, Dongdong Kang, Huayang Sun, Jianhua Wu, and Jianmin Yuan. Structure, equation of state, diffusion and viscosity of warm dense fe under the conditions of a giant planet core. *New Journal of Physics*, 15(4) :045003, 2013.
- [68] Cong Wang, Zhe-Bin Wang, Qi-Feng Chen, and Ping Zhang. Quantum molecular dynamics study of warm dense iron. *Phys. Rev. E*, 89 :023101, Feb 2014.
- [69] S. X. Hu, T. R. Boehly, and L. A. Collins. Properties of warm dense polystyrene plasmas along the principal hugoniot. *Phys. Rev. E*, 89 :063104, Jun 2014.
- [70] Cong Wang, Xian-Tu He, and Ping Zhang. Thermophysical properties for shock compressed polystyrene. *Physics of Plasmas*, 18(8) :082707, 2011.
- [71] Sebastien Hamel, Lorin X. Benedict, Peter M. Celliers, M. A. Barrios, T. R. Boehly, G. W. Collins, Tilo Döppner, J. H. Eggert, D. R. Farley, D. G. Hicks, J. L. Kline, A. Lazicki, S. LePape, A. J. Mackinnon, J. D. Moody, H. F. Robey, Eric Schwegler, and Philip A. Sterne. Equation of state of $\text{ch}_{1.36}$: First-principles molecular dynamics simulations and shock-and-release wave speed measurements. *Phys. Rev. B*, 86 :094113, Sep 2012.

- [72] J.-F. Danel and L. Kazandjian. Equation of state of a dense plasma by orbital-free and quantum molecular dynamics : Examination of two isothermal-isobaric mixing rules. *Phys. Rev. E*, 91 :013103, Jan 2015.
- [73] Thomas. R. Mattsson, J. Matthew D. Lane, Kyle. R. Cochrane, Michael P. Desjarlais, Aidan P. Thompson, Flint Pierce, and Gary. S. Grest. First-principles and classical molecular dynamics simulation of shocked polymers. *Phys. Rev. B*, 81, February 2010.
- [74] D. V. Knyazev and P. R. Levashov. Ab initio calculation of thermodynamic, transport, and optical properties of ch2 plastics. *Physics of Plasmas*, 22 :053303, 2015.
- [75] Jean-Pierre Hansen and Ian R. McDonald. *Theory of simple liquids*. Academic Press, 1976.
- [76] Loup Verlet. Computer "experiments" on classical fluids. i. thermodynamical properties of lennard-jones molecules. *Phys. Rev.*, 159 :98–103, Jul 1967.
- [77] LOUP VERLET. Computer "experiments" on classical fluids. ii. equilibrium correlation functions. *Phys. Rev.*, 165 :201–214, Jan 1968.
- [78] R. O. Jones. Density functional theory : its origins, rise to prominence, and future. *Rev. Mod. Phys.*, 87 :897–923, August 2015.
- [79] P. Hohenberg and W. Kohn. Inhomogeneous electron gas. *Phys. Rev.*, 136 :864–871, 1964.
- [80] E Fermi. Eine statistische methode zur bestimmung einiger eigenschaften des atoms und ihre anwendung auf die theorie des periodischen systems der elemente. *Zeitschrift fur Physik*, 48 :73–79, January 1928.
- [81] S. X. Hu, L. A. Collins, V. N. Goncharov, J. D. Kress, R. L. McCrory, and S. Skupsky. First-principles investigations on ionization and thermal conductivity of polystyrene for inertial confinement fusion applications. *Physics of Plasmas*, 23(4) :042704, 2016.
- [82] W. Kohn and L. Sham. Self-consistent equations including exchange and correlation effects. *Phys. Rev.*, 140 :A1133–A1138, Nov 1965.
- [83] N. D. Mermin. Thermal properties of the inhomogeneous electrons gas. *Phys. Rev.*, 137 :1441–1443, 1965.
- [84] J. Clerouin. De la matière condensée au plasma : un challenge pour la simulation. *chocs*, 26, novembre 2008.

- [85] John P. Perdew and Yue Wang. Accurate and simple analytic representation of the electron-gas correlation energy. *Phys. Rev. B*, 45 :13244–13249, Jun 1992.
- [86] D. M. Ceperley and B. J. Alder. Ground state of the electron gas by a stochastic method. *Phys. Rev. Lett.*, 45 :566–569, Aug 1980.
- [87] D. R. Hamann, M. Schluter, and C. Chiang. Norm-conserving pseudopotentials. *Phys. Rev. Lett.*, 43 :1494–1497, Nov 1979.
- [88] P. E. Blöchl. Projector augmented-wave method. *Phys. Rev. B*, 50 :17953–17979, Dec 1994.
- [89] N. A. W. Holzwarth, G. E. Matthews, R. B. Dunning, A. R. Tackett, and Y. Zeng. Comparison of the projector augmented-wave, pseudopotential, and linearized augmented-plane-wave formalisms for density-functional calculations of solids. *Phys. Rev. B*, 55 :2005–2017, Jan 1997.
- [90] G. Kresse and D. Joubert. From ultrasoft pseudopotentials to the projector augmented-wave method. *Phys. Rev. B*, 59 :1758–1775, Jan 1999.
- [91] Marc Torrent, François Jollet, François Bottin, Gilles Zérah, and Xavier Gonze. Implementation of the projector augmented-wave method in the {ABINIT} code : Application to the study of iron under pressure. *Computational Materials Science*, 42(2) :337 – 351, 2008.
- [92] J. J. Mortensen, L. B. Hansen, and K. W. Jacobsen. Real-space grid implementation of the projector augmented wave method. *Phys. Rev. B*, 71 :035109, Jan 2005.
- [93] N. W. Ashcroft and N. D. Mermin. *Physique des solides*. EDP Sciences, 1976.
- [94] X. Gonze, B. Amadon, P.-M. Anglade, J.-M. Beuken, F. Bottin, P. Boulanger, F. Bruneval, D. Caliste, R. Caracas, M. Côté, T. Deutsch, L. Genovese, Ph. Ghosez, M. Giantomassi, S. Goedecker, D.R. Hamann, P. Hermet, F. Jollet, G. Jomard, S. Leroux, M. Mancini, S. Mazevet, M.J.T. Oliveira, G. Onida, Y. Pouillon, T. Rangel, G.-M. Rignanese, D. Sangalli, R. Shaltaf, M. Torrent, M.J. Verstraete, G. Zerah, and J.W. Zwanziger. Abinit : First-principles approach to material and nanosystem properties. *Computer Physics Communications*, 180(12) :2582 – 2615, 2009. 40 {YEARS} {OF} CPC : A celebratory issue focused on quality software for high performance, grid and novel computing architectures.
- [95] François Bottin, Stéphane Leroux, Andrew Knyazev, and Gilles Zérah. Large-scale ab initio calculations based on three levels of parallelization. *Computational Materials Science*, 42(2) :329 – 336, 2008.

- [96] M. Theobald, D. Dumay, C. Chicanne, J. Barnouin, O. Legaie, and P. Baclet. Roughness optimization at high modes for gdp ch microshells. *Fusion Science and Technology*, 45 :176–179, 2004.
- [97] S. Le Tacon, C. Chicanne, M. Theobald, and O. Legaie. Development in glass shells production from silicon-doped gdp for noncryogenic lmj target. *Fusion Science and Technology*, 59 :99–104, 2011.
- [98] H. Huang, D. M. Haas, Y. T. Lee, J. J. Wu, K. A. Moreno, R. B. Stephens, A. Nikroo, M. Stadermann, and S. D. Bhandarkar. Oxygen profile determination in nif gdp capsules using contact radiography. *Fusion Science and Technology*, 63(2) :142–150, 2013.
- [99] Peter Minary, Glenn J. Martyna, and Mark E. Tuckerman. Algorithms and novel applications based on the isokinetic ensemble. i. biophysical and path integral molecular dynamics. *The Journal of Chemical Physics*, 118(6) :2510–2526, 2003.
- [100] G. Huser, V. Recoules, N. Ozaki, T. Sano, Y. Sakawa, G. Salin, B. Albertazzi, K. Miyanishi, and R. Kodama. Experimental and *ab initio* investigations of microscopic properties of laser-shocked ge-doped ablator. *Phys. Rev. E*, 92 :063108, Dec 2015.
- [101] John P. Perdew, Kieron Burke, and Matthias Ernzerhof. Generalized gradient approximation made simple. *Phys. Rev. Lett.*, 77 :3865–3868, Oct 1996.
- [102] D. R. Lide. *CRC Handbook of Chemistry and Physics*, volume 90th edition. CRC Handbook of Chemistry and Physics, 2009-2010.
- [103] T. Plisson. *soumis Ã J. Appl. Phys.*, 2016.
- [104] Thomas Plisson. Technical report, CEA, 2014.
- [105] P. G. Johanssen. Refractive index of the alkali halides. i. constant joint density of states model. *Phys. Rev. B*, 55 :6856–6864, Mar 1997.
- [106] P. G. Johanssen, G. Reib, U. Bohle, J. Magiera, R. Müller, H. Spiekermann, and W. B. Holzapfel. Refractive index of the alkali halides. ii. effect of pressure on the refractive index of 11 alkali halides. *Phys. Rev. B*, 55 :6865–6870, Mar 1997.
- [107] P. I. Dorogokupets and A. Dewaele. Equations of state of mgo, au, pt, nacl-b1, and nacl-b2 : Internally consistent high-temperature pressure scales. *High Pressure Research*, 27(4) :431–446, 2007.

- [108] P Vinet, J Ferrante, J R Smith, and J H Rose. A universal equation of state for solids. *Journal of Physics C : Solid State Physics*, 19(20) :L467, 1986.
- [109] Wilfried B. Holzapfel. *High Press. Res*, 16(81), 1998.
- [110] G. Salin. Technical report, CEA, 2015.
- [111] David Liberman. Self-consistent field model for condensed matter. *Phys. Rev. B*, 20 :4981–4989, Dec 1979.
- [112] S. W. Haan, H. Huang, M. A. Johnson, M. Stadermann, S. Baxamusa, S. Bhandarkar, D. S. Clark, V. Smalyuk, and H. F. Robey. Instability growth seeded by oxygen in ch shells on the national ignition facility. *Physics of Plasmas*, 22(3) :032708, 2015.
- [113] Flavien Lambert and Vanina Recoules. Plastic ablator and hydrodynamic instabilities : A first-principles set of microscopic coefficients. *Phys. Rev. E*, 86 :026405, Aug 2012.
- [114] J.-F. Danel and L. Kazandjian. *Phys. Rev. E*, 91 :013103, 2015.
- [115] G. Salin. Technical report, CEA, 2014.
- [116] Ya. B. Zel'dovich and Yu. P. Raizer. *Physics of Shock Waves and High-Temperature Hydrodynamic Phenomena*. Dover Publications, INC, 1966-1967.
- [117] Alessandra Benuzzi. *Génération de hautes pressions par choc laser : Application à la mesure d'équation d'état*. Archives-ouvertes.fr, 1997.
- [118] Gael Huser. *Equation d'état du fer comprimé par choc laser*. Archives-ouvertes.fr, 2004.
- [119] P. M. Celliers, G. W. Collins, D. G. Hicks, and J. H. Eggert. Systematic uncertainties in shock-wave impedance-match analysis and the high-pressure equation of state of al. *Journal of Applied Physics*, 98 :113529, Dec 2005.
- [120] M. D. Furnish and E. Ito. Experimental measurements of the hugoniot of stishovite. Technical report, SAND952342 UC-703, Unlimited Release, Printed October 1995, 1995.
- [121] R. F. Trunin, G. V. Simakov, M. A. Podurets, B. N. Moiseyev, and L. V. Popov. Dynamic compressibility of quartz and quartzite at high pressure. *Earth Physics*, 1, 1970.
- [122] R. F. Trunin. Shock compressibility of condensed materials in strong shock waves generated by underground nuclear explosions. *Physics-Uspeski*, 37 :1123, 1994.

- [123] R. F. Trunin. Shock compression of condensed materials (laboratory studies). *Physics-Uspekhi*, 44 :371, 2001.
- [124] S-N Luo, J. L. Mosenfelder, P. D. Asimov, and Ahrens T. J. Stishovite and its implications in geophysics : New results from shock wave experiments and theoretical modeling. *Physics-Uspekhi*, 45 :435, 2002.
- [125] S-N Luo, J. L. Mosenfelder, P. D. Asimov, and Ahrens T. J. Direct shock wave loading of stishovite to 235 gpa : Implications for perovskite stability relative to an oxide assemblage at lower mantle conditions. *Geophysical research letters*, 29 :1691, 2002.
- [126] Tudor Wyatt Johnston and John M. Dawson. Correct values for high frequency power absorption by inverse bremsstrahlung in plasmas. *Physics of Fluids*, 16(5) :722–722, 1973.
- [127] J. D. Johnson. *Shock Compression of Condensed Materials*. American Institute of Physics Conf. Proc. No. 429 edited by S. C. Schmidt, p 27., 1997.
- [128] D. G. Hicks, T. R. Boehly, P. M. Celliers, J. H. Eggert, E. Vianello, D. D. Meyerhofer, and G. W. Collins. Shock compression of quartz in the high-pressure fluid regime. *Physics of Plasmas*, 12(8) :082702, 2005.
- [129] Stéphanie Brygoo. *Chocs laser sur le diamant, l'hélium et l'hydrogène : une étude expérimentale de la Warm Dense Matter*. Archives-ouvertes.fr, 2010.
- [130] D. G. Hicks, T. R. Boehly, J. H. Eggert, J. E. Miller, P. M. Celliers, and G. W. Collins. Dissociation of liquid silica at high pressures and temperatures. *Phys. Rev. Lett.*, 97 :025502, Jul 2006.
- [131] D. G. Hicks, P. M. Celliers, D. K. Bradley, J. H. Eggert, R. S. McWilliams, R. Jeanloz, and G. W. Collins. High-precision measurements of the diamond hugoniot in and above the melt region. *Phys. Rev. B.*, 78 :174102, Nov. 2008.
- [132] M. D. Knudson and M. P. Desjarlais. Adiabatic release measurements in α -quartz between 300 and 1200 gpa : Characterization of α -quartz as a shock standard in the multimegabar regime. *Phys. Rev. B*, 88 :184107, Nov 2013.
- [133] M. D. Knudson, M. P. Desjarlais, and Aurora Pribram-Jones. Adiabatic release measurements in aluminum between 400 and 1200 gpa : Characterization of aluminum as a shock standard in the multimegabar regime. *Phys. Rev. B*, 91 :224105, Jun 2015.

- [134] M. Keith Matzen, M. A. Sweeney, R. G. Adams, J. R. Asay, J. E. Bailey, G. R. Bennett, D. E. Bliss, D. D. Bloomquist, T. A. Brunner, R. B. Campbell, G. A. Chandler, C. A. Coverdale, M. E. Cuneo, J.-P. Davis, C. Deeney, M. P. Desjarlais, G. L. Donovan, C. J. Garasi, T. A. Hail, C. A. Hall, D. L. Hanson, M. J. Hurst, B. Jones, M. D. Knudson, R. J. Leeper, R. W. Lemke, M. G. Mazarakis, D. H. McDaniel, T. A. Mehlhorn, T. J. Nash, C. L. Olson, J. L. Porter, P. K. Rambo, S. E. Rosenthal, G. A. Rochau, L. E. Ruggles, C. L. Ruiz, T. W. L. Sanford, J. F. Seamen, D. B. Sinars, S. A. Slutz, I. C. Smith, K. W. Struve, W. A. Stygar, R. A. Vesey, E. A. Weinbrecht, D. F. Wenger, and E. P. Yu. Pulsed-power-driven high energy density physics and inertial confinement fusion research). *Physics of Plasmas*, 12(5) :055503, 2005.
- [135] C. Garban-Labaune, E. Fabre, C. E. Max, R. Fabbro, F. Amiranoff, J. Virmont, M. Weinfeld, and A. Michard. Effect of laser wavelength and pulse duration on laser-light absorption and back reflection. *Phys. Rev. Lett.*, 48 :1018–1021, Apr 1982.
- [136] I. P. Shkarovsky, T. W. Johnson, and M. P. Bashynski. *The particles kinetics of plasmas*. Addison-Wesley, Reading, MA, 1966.
- [137] Patrick Mora. Theoretical model of absorption of laser light by a plasma. *Physics of Fluids*, 25(6) :1051–1056, 1982.
- [138] L. M. Barker and R. E. Hollenbach. Interferometer technique for measuring the dynamic mechanical properties of materials. *Review of Scientific Instruments*, 36(11) :1617–1620, 1965.
- [139] L. M. Barker and R. E. Hollenbach. Shock wave studies of pmma, fused silica, and sapphire. *Journal of Applied Physics*, 41(10) :4208–4226, 1970.
- [140] L. M. Barker and R. E. Hollenbach. Laser interferometer for measuring high velocities of any reflecting surface. *Journal of Applied Physics*, 43(11) :4669–4675, 1972.
- [141] L. M. Barker and K. W. Schuler. Correction to the velocity per fringe relationship for the visar interferometer. *Journal of Applied Physics*, 45(8) :3692–3693, 1974.
- [142] M. D. Knudson and M. P. Desjarlais. Shock compression of quartz to 1.6 tpa : Redefining a pressure standard. *Phys. Rev. Lett.*, 103 :225501, Nov 2009.
- [143] P. M. Celliers, P. Loubeyre, J. H. Eggert, S. Brygoo, R. S. McWilliams, D. G. Hicks, T. R. Boehly, R. Jeanloz, and G. W. Collins. Insulator-to-conducting transition in dense fluid helium. *Phys. Rev. Lett.*, 104 :184503, May 2010.

- [144] Tingting Qi, Marius Millot, Richard G. Kraus, Seth Root, and Sebastien Hamel. Optical and transport properties of dense liquid silica. *Physics of Plasmas*, 22(6) :062706, 2015.
- [145] Adrien Denoeud. *Etude de la matière dense et tiède à l'aide de diagnostics X : Applications aux intérieurs planétaires*. Archives-ouvertes.fr, 2014.
- [146] J. E. Miller, T. R. Boehly, A. Melchior, D. D. Meyerhofer, P. M. Celliers, J. H. Eggert, D. G. Hicks, C. M. Sorce, J. A. Oertel, and P. M. Emmel. Streaked optical pyrometer system for laser-driven shock-wave experiments on omega. *Review of Scientific Instruments*, 78(3) :034903, 2007.
- [147] A. Benuzzi, M. Koenig, B. Faral, J. Krishnan, F. Pisani, D. Batani, S. Bossi, D. Beretta, T. Hall, S. Ellwi, S. Huller, J. Honrubia, and N. Grandjouan. Preheating study by reflectivity measurements in laser-driven shocks. *Physics of Plasmas*, 5(6) :2410–2420, 1998.
- [148] V. A. Sirnonenko, N. P. Voloshin, A. S. Vladimirov, A. P. Nagibin, V. N. Nogin, V. A. Popov, V. A. Vasilenko, and Yu. A. Shoidin. Absolute measurements of shock compressibility of aluminum at pressures above 1 tpa. *Zh. Eksp. Teor. Fiz.*, 88 :1452–1459, 1985.
- [149] M. D. Knudson, R. W. Lemke, D. B. Hayes, C. A. Hall, C. Deeney, and J. R. Asay. Near-absolute hugoniot measurements in aluminum to 500 gpa using a magnetically accelerated flyer plate technique. *Journal of Applied Physics*, 94(7) :4420–4431, 2003.
- [150] D. G. Hicks, P. M. Celliers, G. W. Collins, J. H. Eggert, and S. J. Moon. Shock-induced transformation of Al_2O_3 and LiF into semiconducting liquids. *Phys. Rev. Lett.*, 91 :035502, Jul 2003.
- [151] D. G. Hicks, T. R. Boehly, P. M. Celliers, J. H. Eggert, S. J. Moon, D. D. Meyerhofer, and G. W. Collins. Laser-driven single shock compression of fluid deuterium from 45 to 220 gpa. *Phys. Rev. B*, 79 :014112, Jan 2009.
- [152] Gregory A. Lyzenga and Thomas J. Ahrens. Shock temperature measurements in Mg_2SiO_4 and SiO_2 at high pressures. *Geophysical Research Letters*, 7(2) :141–144, 1980.
- [153] S Brygoo, E Henry, P Loubeyre, J Eggert, M Koenig, B Loupiau, A Benuzzi-Mounaix, and M Rabec Le Gloahec. Laser-shock compression of diamond and evidence of a negative-slope melting curve. *Nature Materials*, 6 :274 – 277, Avr 2007.
- [154] Stephanie Brygoo, Marius Millot, Paul Loubeyre, Amy E. Lazicki, Sebastien Hamel, Tingting Qi, Peter M. Celliers, Federica Coppari, Jon H. Eggert, Dayne E. Fratanduono, Damien G. Hicks, J. Ryan Rygg, Raymond F. Smith, Damian C. Swift, Gilbert W. Collins, and Raymond Jeanloz.

- Analysis of laser shock experiments on precompressed samples using a quartz reference and application to warm dense hydrogen and helium. *Journal of Applied Physics*, 118(19) :195901, 2015.
- [155] N. Ozaki, T. Sano, M. Ikoma, K. Shigemori, T. Kimura, K. Miyanishi, T. Vinci, F. H. Ree, H. Azechi, T. Endo, Y. Hironaka, Y. Hori, A. Iwamoto, T. Kadono, H. Nagatomo, M. Nakai, T. Norimatsu, T. Okuchi, K. Otani, T. Sakaiya, K. Shimizu, A. Shiroshita, A. Sunahara, H. Takahashi, and R. Kodama. Shock Hugoniot and temperature data for polystyrene obtained with quartz standard. *Physics of Plasmas*, 16(6), 2009.
- [156] M. A. Barrios, D. G. Hicks, T. R. Boehly, D. E. Fratanduono, J. H. Eggert, P. M. Celliers, G. W. Collins, and D. D. Meyerhofer. High-precision measurements of the equation of state of hydrocarbons at 1-10 mbar using laser-driven shock waves. *Physics of Plasmas*, 17(5), 2010.
- [157] M. A. Barrios, T. R. Boehly, D. G. Hicks, D. E. Fratanduono, J. H. Eggert, G. W. Collins, and D. D. Meyerhofer. Precision equation-of-state measurements on national ignition facility ablator materials from 1 to 12 mbar using laser-driven shock waves. *Journal of Applied Physics*, 111(9), 2012.
- [158] R. Ramis, R. Schmalz, and J. Meyer-Ter-Vehn. Multi : A computer code for one-dimensional multigroup radiation hydrodynamics. *Computer Physics Communications*, 49 :475–505, jun 1988.
- [159] G. Huser, N. Ozaki, T. Sano, Y. Sakawa, K. Miyanishi, G. Salin, Y. Asaumi, M. Kita, Y. Kondo, K. Nakatsuka, H. Uranishi, T. Yang, N. Yokoyama, D. Galmiche, and R. Kodama. Hugoniot and mean ionization of laser-shocked ge-doped plastic. *Physics of Plasmas*, 20(12) :122703, 2013.
- [160] K. Takamatsu, N. Ozaki, K. A. Tanaka, T. Ono, K. Nagai, M. Nakai, T. Watari, A. Sunahara, M. Nakano, T. Kataoka, H. Takenaka, M. Yoshida, K. Kondo, and T. Yamanaka. Equation-of-state measurements of polyimide at pressures up to 5.8 tpa using low-density foam with laser-driven shock waves. *Phys. Rev. E*, 67 :056406, May 2003.
- [161] M. A. Barrios, D. G. Hicks, T. R. Boehly, D. E. Fratanduono, J. H. Eggert, P. M. Celliers, G. W. Collins, and D. D. Meyerhofer. High-precision measurements of the equation of state of hydrocarbons at 1-10 mbar using laser-driven shock waves. *Physics of Plasmas*, 17(5) :056307, 2010.
- [162] M. A. Barrios, T. R. Boehly, D. G. Hicks, D. E. Fratanduono, J. H. Eggert, G. W. Collins, and D. D. Meyerhofer. Precision equation-of-state measurements on national ignition facility ablator

- materials from 1 to 12 mbar using laser-driven shock waves. *Journal of Applied Physics*, 111(9) :–, 2012.
- [163] L. V. Al'Tshuler, S. B. Korner, M. I. Brazhnik, L. A. Vladimirov, M. P. Speranskaya, and A. I. Funtikov. The isentropic compressibility of aluminium, copper, lead, and iron at high pressures. *Sov. Phys. JETP*, 38 :1061, 1960.
- [164] P. M. Celliers, G. W. Collins, L. B. Da Silva, D. M. Gold, R. Cauble, R. J. Wallace, M. E. Foord, and B. A. Hammel. Shock-induced transformation of liquid deuterium into a metallic fluid. *Phys. Rev. Lett.*, 84 :5564–5567, Jun 2000.
- [165] W. Theobald, J. E. Miller, T. R. Boehly, E. Vianello, D. D. Meyerhofer, T. C. Sangster, J. Eggert, and P. M. Celliers. X-ray preheating of window materials in direct-drive shock-wave timing experiments. *Physics of Plasmas*, 13 :122702, 2006.
- [166] Ryogo Kubo. Statistical-mechanical theory of irreversible processes. i. general theory and simple applications to magnetic and conduction problems. *Journal of the Physical Society of Japan*, 12(6) :570–586, 1957.
- [167] D A Greenwood. The boltzmann equation in the theory of electrical conduction in metals. *Proceedings of the Physical Society*, 71(4) :585, 1958.
- [168] S. Mazevet, M. Torrent, V. Recoules, and F. Jollet. Calculations of the transport properties within the {PAW} formalism. *High Energy Density Physics*, 6(1) :84 – 88, 2010.
- [169] C. Cherfils-Clérouin, C. Boniface, M. Bonnefille, E. Dattolo, D. Galmiche, P. Gauthier, J. Giorla, S. Laffite, S. Liberatore, P. Loiseau, G. Malinie, L. Masse, P. E. Masson-Laborde, M. C. Monteil, F. Poggi, P Seytor, F. Wagon, and J. L. Willien. Progress on Imj targets for ignition. *Plasma Physics and Controlled Fusion*, 51(12) :124018, 2009.

Titre : Étude de l'équation d'état des matériaux ablateurs synthétisés pour les capsules du Laser Mégajoule

Mots clés : équation d'état, matériaux ablateurs, fusion par confinement inertiel, ondes de choc, courbe d'Hugoniot, coefficient de Grüneisen, Laser Mégajoule.

Résumé :

Cette thèse s'inscrit dans le cadre de recherches menées sur la fusion par confinement inertiel (FCI). En particulier, l'étude proposée ici s'est concentrée sur les équations d'état tabulées de deux matériaux ablateurs synthétisés sur les capsules du Laser Mégajoule. Le but est alors de tester la modélisation théorique implémentée dans ces tables. Nous avons concentré notre étude sur un domaine restreint du diagramme de phase caractérisé par des pressions de quelques mégabars et de températures de quelques électronvolts qui peut être atteint sur des installations laser de tailles moyennes.

Pour ce faire, nous nous sommes basés sur le modèle QEOS, car il est simple d'utilisation, paramétrable et donc facilement modifiable.

Nous avons ensuite appliqué les méthodes de la dynamique moléculaire quantique pour générer la courbe froide et la courbe d'Hugoniot des deux matériaux étudiés. Nous avons notamment mis en avant l'influence de la dissociation chimique sur la forme de ces courbes. Une comparaison avec le modèle QEOS a montré un écart important sur l'Hugoniot. Une modification de ce modèle, à travers le coefficient de Grüneisen, nous a ensuite permis de restituer les effets observés et d'étudier leurs impacts sur la chronométrie des chocs dans une capsule de FCI.

Parallèlement à cette étude numérique, nous avons mesuré des états thermodynamiques le long de l'Hugoniot lors de trois campagnes sur les installations laser LULI2000 et GEKKO XII. L'utilisation de diagnostics VISAR et d'un diagnostic d'émission propre, nous a alors permis de sonder la matière sous choc. En outre, les données expérimentales ont confirmé les précédents résultats.

Cette étude a été réalisée sur deux matériaux ablateurs différents parmi lesquels on distingue le polymère non dopé CHO et le polymère dopé au silicium CHOSi. Nous avons ainsi montré un comportement universel de ces matériaux le long de l'Hugoniot.

Title: Ablator materials equation of state study using in Laser Mégajoule capsules

Keywords: equation of state, ablator materials, inertial confinement fusion, shockwaves, Hugoniot curve, Grüneisen parameter, Laser Mégajoule

Abstract:

This PhD thesis enters the field of inertial confinement fusion studies. In particular, it focuses on the equation of state tables of ablator materials synthesized on LMJ capsules. This work is indeed aims at improving the theoretical models introduced into the equation of state tables. We focused in the Mbar-eV pressure-temperature range because it can be access on kJ-scale laser facilities.

In order to achieve this, we used the QEOS model, which is simple to use, configurable, and easily modifiable.

First, quantum molecular dynamics (QMD) simulations were performed to generate cold compression curve as well as shock compression curves along the principal Hugoniot. Simulations were compared to QEOS model and showed that atomic bond dissociation has an effect on the compressibility. Results from these simulations are then used to parametrize the Grüneisen parameter in order to generate a tabulated equation of state that includes dissociation. It allowed us to show its influence on shock timing in a hydrodynamic simulation.

Second, thermodynamic states along the Hugoniot were measured during three experimental campaigns upon the LULI2000 and GEKKO XII laser facilities. Experimental data confirm QMD simulations.

This study was performed on two ablator materials which are an undoped polymer CHO, and a silicon-doped polymer CHOSi. Results showed universal shock compression properties.