

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

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

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

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

Effet de la température

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

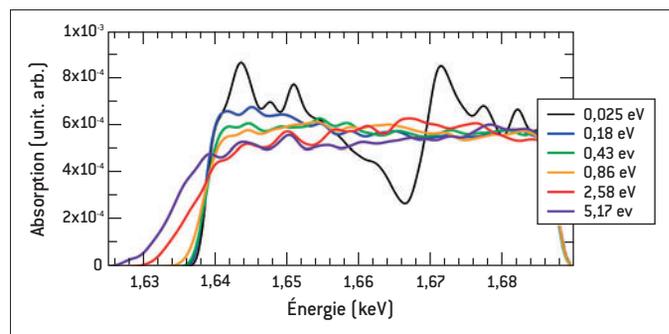


Figure 1. Spectres XANES près du seuil K de l'aluminium calculés à la densité du solide pour différentes températures.

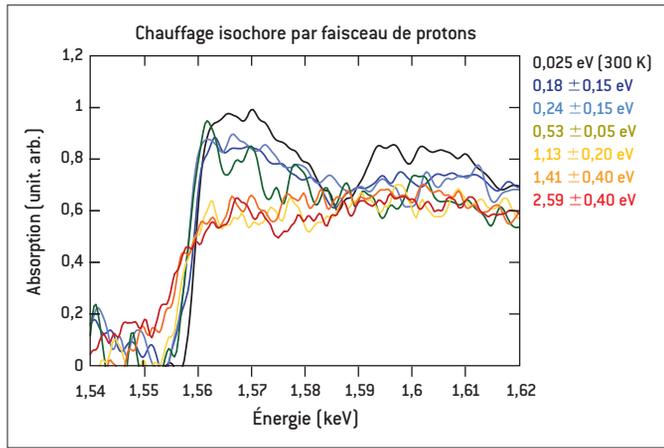


Figure 2. Spectres XANES près du seuil *K* de l'aluminium mesurés à la densité du solide, pour différentes températures.

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

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

Effet de la densité

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

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

Conclusion

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

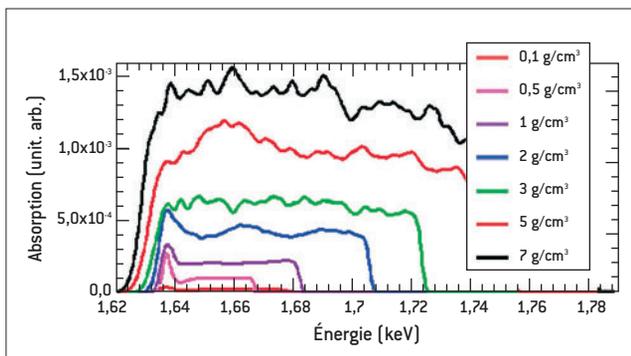


Figure 3. Spectres XANES près du seuil *K* de l'aluminium calculés pour différentes masses volumiques, pour une température de 17 000 K (1,5 eV).

RÉFÉRENCES

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