

SIMULER LA MATIÈRE DANS DES CONDITIONS EXTRÊMES

J. CLÉROUIN, S. MAZEVET, S. LE ROUX, G. ZERAH, F. LAMBERT, J.-F. DANIEL, L. KAZANDJIAN
CEA - DAM - Île-de-France

La dynamique moléculaire quantique (DMQ) s'est imposée comme l'outil de choix pour décrire les propriétés de la matière dense et chaude, telle que nous la trouvons dans les planètes géantes, la matière sous choc, ou les cibles lasers. La DMQ a permis de calculer la courbe d'Hugoniot du deutérium, d'expliquer la réflectivité d'isolants choqués, ou la conductivité de métaux détendus. Malheureusement cette approche est limitée en température et en densité ($T < 50\,000\text{ K}$ et $\rho < 5\rho_0$). De récents travaux, et deux thèses (F. Lambert – soutenue en juillet 2007 – et S. Le Roux – en cours) ont permis de prolonger cette approche vers les hautes températures et les hautes densités, rendant possible la simulation de matériaux à des millions de degrés et à des centaines de grammes par cm^3 .

Un outil pour explorer la matière dense et chaude

Quelle est la température de fusion d'un matériau à très haute pression ? Comment un isolant devient-il conducteur sous choc ? Quel est le comportement de l'hydrogène au cœur de Jupiter ? Pour répondre à ces questions, il faut connaître les propriétés de la matière en dehors des régimes habituels, et dans des situations intermédiaires entre la physique de la matière condensée et la physique des plasmas à haute température. Les actions conjointes de la pression (de l'ordre du Mbar) et de la température (de 1 à 100 eV, soit 10^4 à 10^6 K) rendent délicat le calcul de l'équation d'état (relation entre la pression, la température et la densité), du fait de la coexistence, pour un même corps, de différentes espèces atomiques (molécules, atomes, ions plusieurs fois ionisés). Calculer les propriétés thermodynamiques d'une telle "soupe", dont on ne connaît pas la recette, est ardu, parce qu'il est difficile de prévoir la composition du mélange, et parce qu'il n'existe pas de petits paramètres permettant de développer des théories de perturbation à partir d'un système de référence bien connu.

La réponse à de telles situations est venue de la matière condensée et de l'approche basée sur la théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT). La mise en œuvre de la DFT à des températures de l'ordre de 10 000 K, à travers la dynamique moléculaire quantique (DMQ), est récente, et n'a été possible que grâce aux moyens de calcul conséquents offerts par la machine TERA-10. La figure 1 permet d'apprécier la complexité de la physique, pour un corps aussi simple que le deutérium à 29 000 K et 1 g/cm^3 . Malheureusement, cette méthode est limitée :

- en température, au-dessous de 10 eV, du fait de l'introduction explicite d'orbitales quantiques, dont le nombre devient prohibitif avec la température ;
- en densité, à cause de l'introduction de pseudo-potentiels qui imposent une séparation entre électrons de cœur et électrons de valence.

Même si nous pouvons espérer repousser quelque peu les limites actuelles, ces limitations, intrinsèques aux méthodes quantiques basées sur des orbitales, interdisent de monter en température, et donc de se raccorder avec le régime plasma.

Vers les très hautes températures

Pour contourner la difficulté liée aux orbitales, nous avons adopté une description simplifiée du système électronique (*approche semi-classique*), en approximant l'énergie cinétique électronique par la forme fonctionnelle donnée par la théorie de *Thomas-Fermi*. Nous évitons ainsi les inconvénients liés aux orbitales, au prix de l'abandon de certaines propriétés, comme la liaison moléculaire ou la structure atomique détaillée. Un tel choix n'est possible que dans des régimes thermodynamiques où les molécules ont disparu, et où les atomes sont déjà très ionisés. Ce choix est raisonnable pour la matière chaude (*supérieure à 10 eV*) et très dense (*pression supérieure au Mbar*). Cette théorie est, d'ailleurs, une composante essentielle des équations d'état, comme *QEOS* ou les tables *SESAME*, dans ce régime. Une telle approche dans sa version dynamique moléculaire (*OFMD*) [1], [2] semble adaptée pour prendre le relais de la *DMQ* vers les hautes pressions et hautes températures, et faire le lien avec des modèles plasmas, comme le plasma à une composante (*OCP*) ou les modèles écrantés (*Yukawa*) [3], que nous pouvons dériver en linéarisant la théorie de *Thomas-Fermi*.

Quel sens y a-t-il à faire de la dynamique moléculaire à très haute température ? Nous pourrions penser que le système est purement cinétique. Or, comme l'ionisation devient très importante pour les corps de Z élevé, les phénomènes de corrélation restent dominants même à 10^6 K et, suivant les corps considérés, la physique est plutôt celle d'un liquide que celle d'un gaz. La question est maintenant de savoir quand cette limite semi-classique est valide.

Pour répondre, nous nous sommes intéressés au bore, le long des isothermes 1 et 4 eV, et nous avons poussé les calculs *DMQ* au maximum de leurs possibilités en densité [4]. Pour cela, nous avons introduit un nouveau pseudo-potential, qui inclut tous les électrons du bore au lieu des 3 électrons les plus externes, habituellement considérés, et nous avons fait varier la densité comme sur la *figure 2*. Si ces deux calculs *DMQ* (à 3 et à 5 électrons) donnent le même résultat à basse densité, nous voyons qu'à haute densité le pseudo-potential à 3 électrons sous-estime la pression, car il ne tient pas compte de l'ionisation progressive des états $1s$. Par contre, nous voyons que, dès 20 g/cm^3 , l'approche semi-classique sans orbitales donne les mêmes résultats que l'approche *DMQ*, pour un coût de calcul bien moindre.

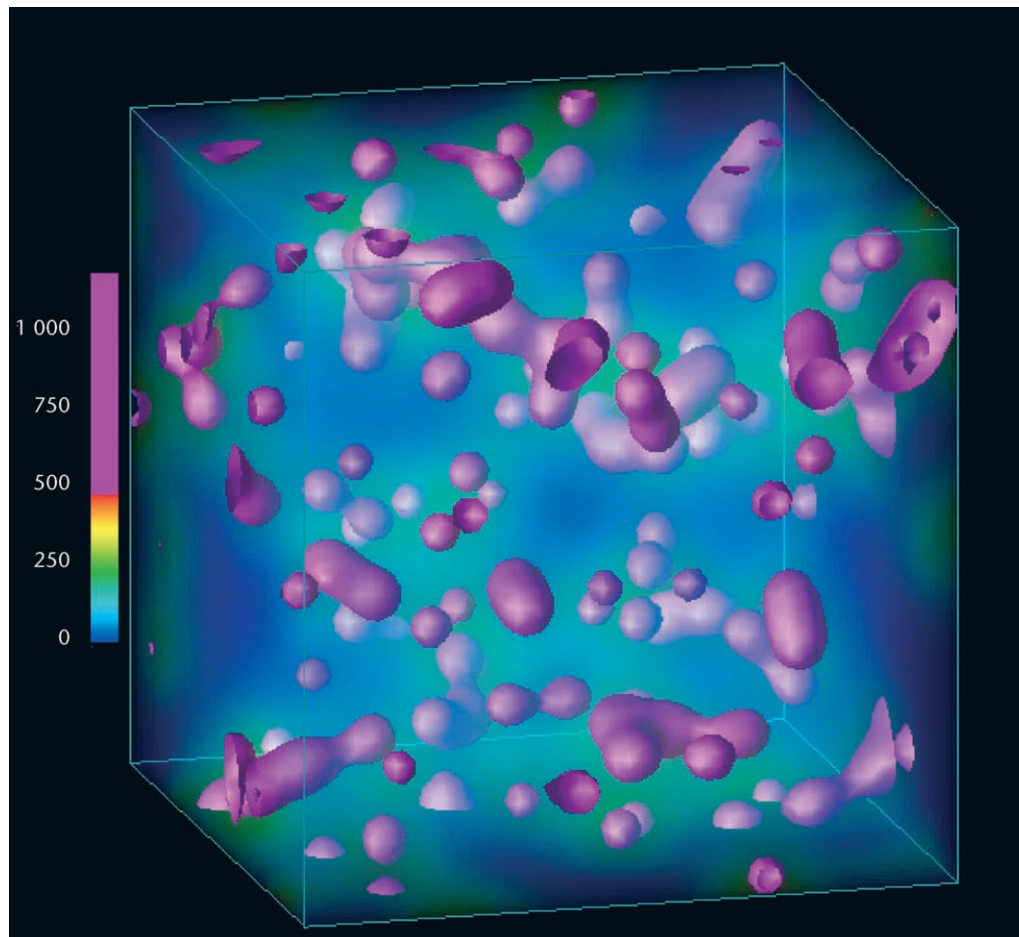


Figure 1 Simulation *DMQ* du deutérium à 29 000 K et 1 g/cm^3 . Ce tracé en 3 dimensions de la densité électronique montre la coexistence d'atomes, de molécules, et de structures complexes au sein du plasma.

L'approche sans orbitales a aussi permis de vérifier des lois de mélange dans des milieux très denses, comme le mélange hélium-fer à 10 g/cm³ et 5 eV, ou deutérium-cuivre à 50 g/cm³ et 100 eV [5]. La simulation permet aussi d'obtenir des propriétés dynamiques importantes, comme la viscosité du mélange ou les coefficients d'interdiffusion.

Les approches sans orbitales peuvent aussi être mises en œuvre dans un contexte complètement quantique reposant sur l'équation de *Schrödinger*, évitant ainsi le calcul des fonctions d'onde, particulièrement pénalisant à haute température. Cette technique, qui converge d'autant plus vite que la température est élevée, est particulièrement bien adaptée au calcul de courbes d'*Hugoniot* de choc très forts. Elle a été appliquée avec succès à l'hélium [6].

Références

[1] F. LAMBERT, J. CLÉROUIN, S. MAZEVET, "Structural and dynamical properties of hot dense matter by a Thomas-Fermi-Dirac molecular dynamics", *Europhysics Letters*, **75**, p. 681-687 (2006).

[2] L. KAZANDJIAN, J.-F. DANIEL, G. ZÉRAH, "Equation of state and sound velocity of a helium plasma by Thomas-Fermi-Dirac molecular dynamics", *Physics of Plasmas*, p. 092701-6 (2006).

[3] D. GILLES, F. LAMBERT, J. CLÉROUIN, 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**, 95-98 (2007).

[4] S. MAZEVET, F. LAMBERT, F. BOTTIN, G. ZÉRAH, J. CLÉROUIN, "Ab initio Molecular Dynamics simulations of dense boron plasmas up to the semiclassical Thomas-Fermi regime", *Physical Review E*, **75**, p. 0564041-6 (2007).

[5] F. LAMBERT, J. CLÉROUIN, L. KAZANDJIAN, J.-F. DANIEL, G. ZÉRAH, "Direct verification of mixing rules in the hot and dense regime", *Physical Review E*, **77**, 026402-9 (2008).

[6] S. LE ROUX, G. ZÉRAH, "Convergence stability and estimator in orbital free electronic structure calculation on a grid at finite temperature", *J. Comp. Phys.*, **226**, p. 2063-2077 (2007).

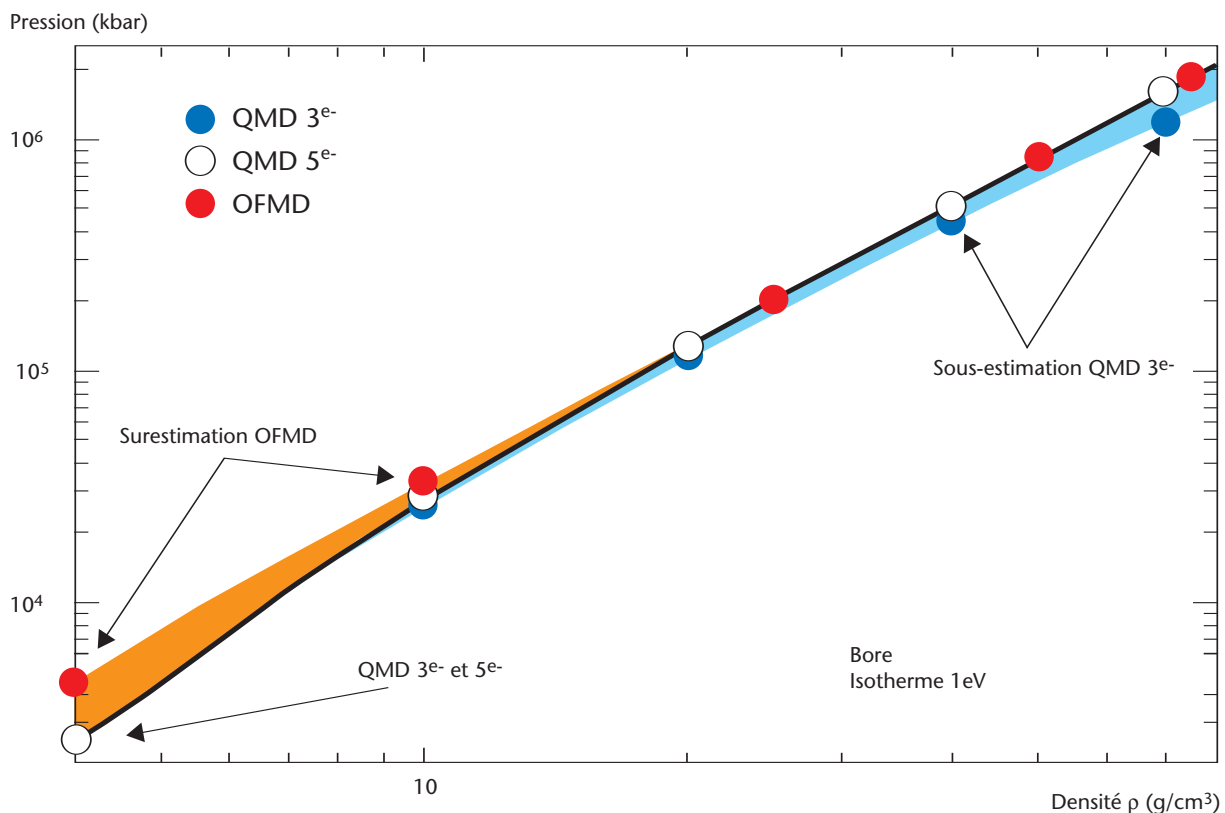


Figure 2

Equation d'état du bore à 1 eV. Comparaison des simulations DMQ (points blancs et bleus) avec les calculs sans orbitales (modèle OFMD points rouges). Les calculs DMQ (à 3 et à 5 électrons) donnent le même résultat à basse densité. À haute densité le pseudo-potential à 3 électrons sous-estime la pression, car il ne tient pas compte de l'ionisation progressive des états *1s*. Dès 20 g/cm³, l'approche semi-classique sans orbitale donne les mêmes résultats que l'approche DMQ, pour un coût de calcul bien moindre.