HAL
open science

Chocs laser sur le diamant, l hélium et l hydrogène: une etude experimentale de la "Warm Dense Matter.

Stéphanie Brygoo

To cite this version:

Stéphanie Brygoo. Chocs laser sur le diamant, l hélium et l hydrogène: une etude experimentale de la "Warm Dense Matter.. Optique [physics.optics]. Ecole Polytechnique X, 2006. Français. NNT : . pastel-00002088

HAL Id: pastel-00002088

https://pastel.hal.science/pastel-00002088

Submitted on 29 Jul 2010

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.

École
Polytechnique

THÈSE DE DOCTORAT

Présentée
à l'École Polytechnique pour obtenir le grade de

DOCTEUR EN SCIENCES
DE L'ÉCOLE POLYTECHNIQUE

Discipline : Physique

par

Stéphanie BRYGOO

Soutenue publiquement le 20 novembre 2006

Chocs laser sur l'hélium, l'hydrogène et le diamant : une étude expérimentale de la "Warm Dense Matter"

Directeur de thèse : Paul LOUBEYRE

JURY

Président	Francesco Sette	Directeur scientifique de l'ESRF, Grenoble
Rapporteur	Gilles Chabrier	Directeur de recherche CNRS, ENS, Lyon
Rapporteur	Michel Boustie	Chargé de recherche CNRS, LCD, Poitiers
Examinateur	Michel Koenig	Directeur de recherche CNRS, LULI, Palaiseau
Examinateur	Paul Loubeyre	Directeur de recherche, CEA, Bruyères les Châtel

Remerciements

Avant toute chose, je tiens à remercier très chaleureusement Paul LOUBEYRE qui m'a dirigée toute au long de cette thèse et qui m'a permis de la réaliser dans les meilleures conditions. Il m'a initiée pendant ces trois années à la recherche expérimentale et m'a beaucoup appris. Toujours très disponible, il m'a apporté des conseils d'une grande aide et je lui en suis très reconnaissante.

Je remercie très sincèrement et avec une grande considération les membres de mon jury pour avoir accepté et pris le temps d'évaluer mes travaux : Gilles CHABRIER et Michel BOUSTIE pour leur travail de rapporteurs, Francesco SETTE pour la présidence de ce jury, Michel KOENIG et Paul LOUBEYRE pour leur travail d'examinateurs.

Ce travail et l'ensemble des résultats obtenus ne sont pas le fruit du travail d'une seule personne, mais d'un travail en équipe tout au long de ces trois années. C'est pourquoi je tiens à remercier toutes les personnes qui ont participé à ces expériences et qui, de près ou de loin, y ont apporté une contribution. Tout d'abord les membres de l'équipe de Gilbert COLLINS du laboratoire de Livermore qui m'ont très vite intégrée à l'équipe et mise au courant du projet déjà en cours. Je remercie Jon EGGERT qui m'a beaucoup appris sur l'analyse des images et sur les expériences, merci d'avoir passé tant de temps à m'expliquer les programmes lors de longues soirées à Rochester. Merci à Peter CELLIERS pour tout le travail réalisé sur les visars et ses explications très claires et très simples. Je remercie aussi Stewart Mc WILLIAMS toujours présent lors des expériences. Enfin, je remercie Raymond JEANLOZ et Gilbert COLLINS qui malgré des emplois du temps très chargés ont toujours été présents pour défendre le projet et participer aux discussions scientifiques.

Merci également à toute l'équipe de Rochester (Tom BOEHLY, pour son accueil toujours chaleureux, Chuck pour sa disponibilité et pour son aide et tous les membres du LLE qui nous ont aidé pour ces expériences).

Je remercie très chaleureusement Emeric HENRY avec qui nous avons fait des expériences au LULI sur l'eau et le diamant. C'est un physicien hors pair sans qui ces expériences ne se seraient pas déroulées si bien. Je le remercie pour m'avoir appris tant de choses et pour avoir toujours été de très bon conseil.

Je remercie très sincèrement et avec une grande considération Alain DECOSTER qui m'a initiée aux codes hydrodynamiques et grâce à qui toutes les simulations ont été réalisées. Merci de m'avoir tant aidé et de m'avoir consacré tant de temps.

Je remercie également l'équipe du LULI, Michel KOENIG, Alessandra BENUZZI-MOUNAIX, Alessandra RAVASIO, Bérénice LOUPIAS, Marc RABEC et toute l'équipe du laser qui nous ont permis de réaliser les expériences.

Un remerciement spécial va à Martine MILLERIOUX très disponible lors de la préparation des cibles et qui a toujours cherché une solution rapide lorsqu'un problème se présentait. Merci pour cette aide précieuse.

Je remercie tous les membres du laboratoire Hautes Pressions Statiques du CEA avec qui j'ai passé ces trois années (Gunnar, Ramesh, Florent, Agnès, Céline et Davina) et qui ont participé à la bonne humeur et au bon déroulement de cette thèse.

Je tiens à remercier également Gilles ZERAH pour m'avoir accueilli au sein de son service ainsi que toutes les personnes qui y travaillent.

Je n'oublie pas tous les membres de l'ancien service P2A (Philippe GUIMBAL, Vincent LE FLANCHEC et toute l'équipe) qui m'ont accueillie au CEA. Même si nous n'avons pas continué l'aventure ensemble, vous m'avez mis sur le chemin de la physique et des grands instruments et je vous en remercie. Merci à toi Claire pour les grandes rigolades et Vincent, je suis sûre que tu seras une grande rock star un jour.

Pour finir je tiens à remercier de tout mon coeur toute ma famille et mes amis qui m'ont toujours soutenue et qui ont toujours été très présents. C'est grâce à eux aussi que tout s'est déroulé dans les meilleures conditions. Un merci particulier à Baptiste, bien plus qu'un collok, qui m'a épaulée et aidée au cours de ces trois dernières années et bien avant. C'est à ton tour maintenant. Merci à tous pour votre soutien et vos encouragements. Je pense très fort à vous.

Une dédicace spéciale au monde du flag qui occupe une grande partie de ma vie. Et une petite précision, ce n'est pas parce que je suis docteur maintenant que je vais pouvoir vous soigner sur le terrain.

Table des matières

I Introduction **1**

II Approche théorique **7**

1 Comportement dynamique : les relations utiles **9**

1.1 Les équations fluides 10
1.1.1 Conservation de la masse 10
1.1.2 Conservation de l'impulsion 10
1.1.3 Conservation de l'énergie 11
1.2 Propagation des ondes sonores 11
1.3 Invariants de Riemann : comportement dynamique le long de l'isentrope 13
1.4 Formation de l'onde de choc 14
1.5 Relation de Rankine-Hugoniot 15
1.5.1 Conservation de la masse 15
1.5.2 Conservation de l'impulsion 16
1.5.3 Conservation de l'énergie 16
1.6 Calcul de la variation d'entropie lors du passage d'une onde de choc 16
1.6.1 L'entropie croît le long de l'Hugoniot 16
1.6.2 Remarque sur l'augmentation d'entropie 17
1.6.3 L'Hugoniot est différente de l'isentrope seulement au 3ème ordre au niveau du pôle 18
1.7 Calcul pour un gaz parfait 19
1.8 Evolution de la température le long de l'Hugoniot 19
1.8.1 Cas du gaz parfait 20
1.8.2 Modèle de Grüneisen 20
1.9 Onde de relaxation 20
1.10 Cas d'une onde de choc dans un solide 22
1.10.1 L'onde élastique 22
1.10.2 Correction de résistance 23

2 Quelques modèles pour décrire la matière dense **25**

2.1 Gaz parfait moléculaire 25
2.1.1 Forme d'énergie libre en fonction de $\gamma = \frac{c_p}{c_v}$ 26
2.1.2 Comportement de l'Hugoniot d'un gaz parfait 28
2.2 Interaction entre atomes 29
2.2.1 Approche chimique avec potentiels 30
2.2.2 Modèle de Grüneisen 31

2.3 Contribution électronique . . . 34
2.3.1 Gaz d'électrons sans interaction . . . 34
2.3.1.1 Modèle de Fermi-Dirac . . . 34
2.3.1.2 Comportement de l'Hugoniot . . . 37
2.3.1.3 Equations de Hartree-Fock . . . 38
2.3.2 Modèle de Thomas-Fermi . . . 39
2.3.3 Théorie de la fonctionnelle de la densité . . . 42
2.4 Ionisation et conductivité . . . 44
2.4.1 Equation de Saha . . . 44
2.4.2 Ionisation en pression . . . 45
2.4.3 Modèle de bandes : fermeture du gap . . . 46
2.4.4 Modèle de Drude . . . 48
2.4.5 Relation entre réflectivité et conductivité . . . 50
2.4.5.1 Propagation du champ dans le milieu . . . 51
2.4.5.2 Relation avec la conductivité . . . 51

III Mise en place expérimentale 53

3 Chocs laser dans des cibles pré-comprimées 55
3.1 Principe du couplage statique-dynamique . . . 55
3.1.1 Approche statique . . . 55
3.1.2 Approche dynamique . . . 56
3.1.3 Couplage statique dynamique . . . 57
3.2 Mesures absolues et mesures relatives . . . 58
3.2.1 Mesures absolues . . . 58
3.2.1.1 Radiographie transverse . . . 58
3.2.1.2 Mesures avec marches . . . 59
3.2.2 Mesures relatives : méthode de désadaptation d'impédance . . . 59
3.2.2.1 Propagation d'un choc entre deux milieux . . . 60
3.2.2.2 Méthode de désadaptation d'impédance . . . 60
3.2.3 Principe d'une cible pour choc laser . . . 62
3.3 La cible pré-comprimée . . . 63
3.3.1 Schéma d'une cible . . . 63
3.3.2 Caractérisation de la cible . . . 63
3.3.2.1 Mesure de la pression initiale . . . 63
3.3.2.2 Mesure de l'épaisseur de l'échantillon . . . 65

4 Mesures des vitesses de choc : technique VISAR 67
4.1 VISAR . . . 67
4.1.1 Interféromètre de Mach Zender . . . 68
4.1.2 Retard introduit par l'étalon . . . 69
4.1.3 Calcul lorsque la cible est immobile . . . 71
4.1.4 Calcul lorsque la cible est animée d'une vitesse v(t) . . . 71
4.1.5 Sensibilité des visars . . . 74
4.1.6 Influence de la réflectivité de la surface en mouvement . . . 75
4.1.7 Nature de l'interface réfléchissante . . . 76
4.2 Traitement des données . . . 77

4.2.1 Données VISAR . . . 77
4.2.2 Traitement de l'image . . . 78
4.2.2.1 Distorsion de l'image . . . 78
4.2.2.2 Franges parasites . . . 79
4.2.3 Extraction de l'information . . . 82
4.2.4 Précision atteinte . . . 83

5 Une nouvelle métrologie : utilisation du quartz 85
5.1 Avantages du quartz . . . 85
5.2 Equation d'état du quartz . . . 86
5.2.1 Diagramme de phase du quartz et propriétés . . . 86
5.2.2 Données expérimentales sur l'Hugoniot . . . 87
5.3 Modèle de détente . . . 89
5.3.1 Modèle de Grüneisen . . . 89
5.3.2 Détermination expérimentale du coefficient de Grüneisen . . . 90
5.3.3 Approximation de la détente isentropique . . . 91
5.3.4 Approximation de l'Hugoniot secondaire . . . 94
5.3.5 Comparaison du modèle avec les modèles existants . . . 95
5.3.6 Comment prendre en compte la précompression ? . . . 96
5.4 Mesure de réflectivité . . . 97
5.5 Mesure de température . . . 99
5.5.1 Technique de mesure . . . 99
5.5.2 Utilisation du quartz comme référence in situ . . . 100
5.6 Estimation des barres d'erreur . . . 102
5.6.1 Erreur sur la vitesse de choc . . . 102
5.6.2 Erreur sur la pression P et la vitesse particule U_p . . . 103
5.6.3 Erreur sur la réflectivité . . . 105
5.6.4 Erreur sur la température . . . 105

6 Les lasers de puissance 107
6.1 Génération d'une onde de choc par laser : interaction laser matière . . . 107
6.1.1 Propagation d'une onde électromagnétique dans un plasma . . . 108
6.1.2 Zone d'interaction . . . 109
6.1.3 Zone de conduction . . . 110
6.2 Simulations hydrodynamiques . . . 111
6.2.1 Code Lagrangien . . . 111
6.2.2 Equations d'état utilisés . . . 112
6.2.3 Dimensionnement de l'expérience . . . 113
6.2.3.1 Influence de l'intensité laser sur le temps de transit dans le diamant . 113
6.2.3.2 Influence de la forme de l'impulsion . . . 113
6.2.4 Analyse des résultats post-expérience . . . 114
6.2.4.1 Transmission du choc . . . 114
6.2.4.2 Evolution de la vitesse du choc . . . 115
6.2.4.3 Estimation du préchauffage . . . 116
6.3 Lasers utilisés . . . 118
6.3.1 OMEGA . . . 118
6.3.2 LULI 2000 . . . 120

IV Résultats **123**

7 Diamant **125**
7.1 Motivations . . . 125
7.2 Connaissances actuelles sur le diagramme de phase . . . 126
7.2.1 Mesures sur l'Hugoniot . . . 126
7.2.2 Evolution de la réflectivité . . . 126
7.2.3 Modèles théoriques . . . 127
7.2.3.1 Modèle de Fried et Howard . . . 127
7.2.3.2 Autres modèles . . . 128
7.3 Résultats . . . 128
7.3.1 Configuration expérimentale . . . 128
7.3.2 Mesures réalisées . . . 130
7.3.3 Evolution de P, ρ, T le long de l'Hugoniot . . . 132
7.3.4 Evolution de la réflectivité . . . 135
7.4 Conséquences astrophysiques . . . 135
7.5 Conclusion . . . 136

8 Hélium **137**
8.1 Motivations . . . 137
8.1.1 Intérêt fondamental . . . 137
8.1.2 Intérêt astrophysique . . . 138
8.2 Connaissances actuelles sur le diagramme de phase . . . 139
8.2.1 Equation d'état . . . 139
8.2.1.1 EOS fluide . . . 139
8.2.1.2 Indice . . . 140
8.2.1.3 Courbe de fusion . . . 140
8.2.1.4 EOS Hugoniot . . . 141
8.2.1.5 Prédictions Hugoniot . . . 141
8.2.2 Ionisation par pression . . . 143
8.2.2.1 Ionisation par pression en phase fluide . . . 143
8.2.2.2 Mesures de conductivité des russes . . . 144
8.3 Résultats . . . 144
8.3.1 Comparaison avec les données existantes : évolution de P, ρ, T à 1.2 kbar . . . 145
8.3.2 Effet de la précompression . . . 146
8.3.3 Ionisation et métallisation . . . 147
8.4 Conclusion . . . 150

9 Hydrogène **153**
9.1 Un intérêt fondamental et astrophysique . . . 153
9.2 Connaissances actuelles sur le diagramme de phase . . . 154
9.2.1 Equation d'état . . . 154
9.2.1.1 EOS fluide . . . 154
9.2.1.2 Indice . . . 155
9.2.1.3 Courbe de fusion et hautes températures . . . 155
9.2.1.4 Controverse sur l'hugoniot du D2 . . . 155
9.2.2 Ionisation . . . 156
9.2.2.1 Mesure du gap dans la phase solide . . . 156

9.2.2.2 Metallisation dans la phase fluide 157
9.2.3 Calculs théoriques 158
9.2.3.1 Modèle chimique 158
9.2.3.2 Possible existence d'une transition de phase plasma 159
9.2.3.3 Comportement de l'Hugoniot 159
9.3 Résultats 160
9.3.1 Objectifs des mesures 160
9.3.2 EOS H2 et D2 161
9.3.3 Effet de la précompression 164
9.3.4 Métallisation 164
9.4 Conséquences astrophysiques 168
9.5 Conclusion 169

10 Hydrogène/Hélium 171
10.1 Problématique astrophysique 171
10.2 Etude des mélanges H2/He : problème de miscibilité 171
10.3 Conséquences sur Jupiter et Saturne 173
10.4 Premiers résultats 175
10.4.1 Comment détecter la miscibilité ? 175
10.4.2 Mesures 175
10.5 Conclusion 177

V Conclusion 179

Table des figures

1 Diagramme Température-Pression 4
2 Domaines atteints par les méthodes statiques et dynamiques 5

1.1 Processus de formation de l'onde de choc 14
1.2 Passage d'une onde de choc 15
1.3 Perte d'énergie le long de l'Hugoniot 17
1.4 Courbe d'Hugoniot pour un gaz parfait 19
1.5 Propagation d'une onde dans un solide 23
1.6 Correction de résistance 23

2.1 Evolution de la pression en fonction du facteur de compression le long de l'Hugoniot . 29
2.2 Mesure du coefficient γ_G 34
2.3 Distribution de Fermi-Dirac 36
2.4 Température en fonction du facteur de compression pour un gaz libre d'électrons . . . 38
2.5 Comparaison à $T = 0$ des résultats obtenus avec les différents modèles TF, TFC, TFD 41
2.6 Théorie des bandes 47
2.7 Élargissement des bandes 48
2.8 Récapitulatif pour relier la réflectivité au gap 52

3.1 Principe de la cellule à enclume diamant 56
3.2 Différents dispositifs pour générer des hautes pressions par des ondes de choc 57
3.3 Domaines atteints par les méthodes statiques et dynamiques 58
3.4 Mesure absolue par radiographie transverse 59
3.5 Mesure absolue par marche 60
3.6 Transmission d'un choc entre deux matériaux 61
3.7 Méthode de désadaptation d'impédance 62
3.8 Cible diamant 62
3.9 Vue 3D d'une cellule cible 63
3.10 Montage de mesure de pression 64
3.11 Mesure de l'épaisseur du quartz et de l'échantillon 65

4.1 Interféromètre de Mach-Zender 68
4.2 Réflection du laser sur une surface en mouvement 68
4.3 Interféromètre de Mach-Zender avec étalon 69
4.4 Chemin des rayons dans l'étalon 69
4.5 Chemin parcouru par les rayons lorsque la surface est en mouvement 71
4.6 Décalage des franges 75
4.7 Différents cas de surface réfléchissantes. 76

4.8 Image VISAR typique 78
4.9 Image de référence avant et après traitement 79
4.10 Représentation schématique du traitement de la distorsion des images 80
4.11 Illustration de l'effet de franges parasites ajoutés au signal 81
4.12 Phase mesurée pour les différents cas de franges parasites 81
4.13 Représentation schématique du traitement des images ayant des franges parasites . . . 82

5.1 Diagramme de phase du quartz 87
5.2 Hugoniot du quartz 88
5.3 Hyperbole du quartz 88
5.4 Détente isentropique dans le plan T-P 90
5.5 Coefficient de Gruneisen en fonction du volume 91
5.6 Comparaison entre le modèle de Grüneisen et diverses tables d'équation d'état 95
5.7 Correction de l'Hugoniot en fonction de la pression initiale 96
5.8 Evolution de la réflectivité du quartz en fonction de U_S 98
5.9 Profil temporel de l'intensité de l'image VISAR 98
5.10 Radiance du corps noir en fonction de la longueur d'onde 99
5.11 Evolution de la température en fonction de la vitesse de choc 100
5.12 Signal d'émission propre collectée par le pyromètre 101
5.13 Estimation des barres d'erreur sur les vitesses de choc 102
5.14 Propagation de l'erreur 103
5.15 Calcul d'erreur Monte Carlo 104
5.16 Profil de réflectivité 105

6.1 Evolution de la température et de la densité lors de l'interaction laser/matiére. 109
6.2 Evolution de la vitesse moyenne du choc dans le diamant en fonction de l'intensité laser 113
6.3 Evolution du choc en fonction du temps 114
6.4 Relation entre la vitesse de choc dans le quartz et dans le matériau étudié 115
6.5 Déplacement du choc en fonction du temps 115
6.6 Opacités du diamant, de la silice et du quartz 116
6.7 Flux spectraux 117
6.8 Préchauffage du diamant 117
6.9 Estimation du préchauffage pour plusieurs configurations de cibles 118
6.10 Vue extérieure de la chambre d'interaction 119
6.11 Schéma du laser Omega 119
6.12 Lissage de la tâche focale du laser 120
6.13 Intérieur de la chambre d'interaction 120
6.14 Schéma du montage de l'expérience au LULI2000 121

7.1 Hugoniot du diamant 126
7.2 Réflectivité en fonction de U_S 127
7.3 Diagramme de phase du diamant 129
7.4 Configuration expérimentale 129
7.5 Us vs Up pour la silice amorphe 130
7.6 Us vs Up pour le diamant 131
7.7 Hugoniot du diamant dans le plan P-ρ 132
7.8 ΔV en fonction de la pression pour différents modèles 133
7.9 Mesure de la température 134

7.10 Courbe de fusion du diamant et Hugoniot 134
7.11 Evolution de la réflectivité en fonction de la vitesse de choc 135

8.1 Diagramme de phase de l'hélium de Ebeling 138
8.2 Masse du coeur de Jupiter 139
8.3 Pression en fonction du volume à T=298 K 140
8.4 Courbe de fusion 140
8.5 Compression de l'hélium : points de Nellis 141
8.6 Hugoniots de l'hélium obtenu par PIMC 142
8.7 Comparaison entre Hugoniots obtenues par modèle ab-initio et par modèle chimique pour l'helium. 143
8.8 Potentiel d'interaction entre deux atomes d'hélium 144
8.9 Conductivité de l'hélium en fonction de la densité 145
8.10 Pression vs compression pour une pression initiale de 0.12 GPa 146
8.11 Température vs pression pour une pression initiale de 0.12 GPa 146
8.12 Pression vs compression pour une pression initiale de 1.2 et 11 kbar 147
8.13 Température vs pression pour une pression initiale de 0.12 et 1.1 GPa 147
8.14 Réflectivité de l'hélium en fonction de la température et de la pression 148
8.15 Réflectivité de l'hélium en fonction de la température 148
8.16 Fraction d'ionisation de l'hélium dans le plan P-T 149
8.17 Conductivité en fonction de la densité 149
8.18 Diagramme de phase de l'hélium 150

9.1 Diagramme de phase théorique de l'hydrogène. 154
9.2 Diagramme de phase expérimentale de l'hydrogène à hautes températures. 155
9.3 Hugoniot du deutérium 156
9.4 Evolution du gap dans la phase solide de l'hydrogène 157
9.5 Energies caractéristiques 158
9.6 Isotherme dans la région de transition de phase plasma PPT 160
9.7 Hugoniot théorique du deutérium 160
9.8 Domaine exploré avec des chocs sur cibles précomprimées. 161
9.9 Points H_2 obtenus dans le plan P-ρ 163
9.10 Points H_2 obtenus dans le plan P-T 163
9.11 Hugoniot du deutérium dans le plan P-$\frac{\rho}{\rho_0}$ 164
9.12 Influence du modèle du quartz sur les résultats. 165
9.13 Hugoniots de H2 dans le plan Pression-$\frac{\rho}{\rho_0}$ 165
9.14 Hugoniots de H2 dans le plan Température-Pression 166
9.15 Réflectivité en fonction de la température. 166
9.16 Diagramme de phase de l'hydrogène en T-P b) 167
9.17 Conductivité en fonction de la température et de la densité 167
9.18 Gap électronique 168

10.1 Intérieurs de Jupiter et Saturne 172
10.2 Récapitulatif des modèles pour He/H_2 173
10.3 Diagramme de phase de H_2 et zone d'immiscibilité 174
10.4 Age de Jupiter et Saturne 174
10.5 Points obtenus dans le plan T-P pour les mélanges He/H_2 176
10.6 Réflectivité dans le plan P-P des points He, H_2 et He/H_2 176

Liste des tableaux

1 Multiplication des facteurs de compression 5

2.1 Limites de compression le long de l'Hugoniot 29

3.1 Multiplication des facteurs de compression 58

6.1 Comparaison entre le système Eulérien et Lagrangien 112
6.2 Comparaison entre Oméga et LULI 2000 120

7.1 Ensemble des points obtenus sur le diamant par VISAR 131
7.2 Ensemble des points obtenus sur le diamant par temps de transit 131

8.1 Ensemble des points obtenus sur l'hélium 145
8.2 Conductivité de l'hélium 150

9.1 Ensemble des points obtenus sur l'hydrogène 162
9.2 Ensemble des points obtenus sur le deutérium 162

10.1 Ensemble des points obtenus sur les mélanges hydrogène/helium 175

Première partie

Introduction

Qu'est qu'une équation d'état ? L'équation d'état est la relation thermodynamique qui relie les grandeurs thermodynamiques T, V, P, E (Température, Volume, Pression, Énergie) d'un système. Elle s'exprime le plus généralement sous la forme P(V, T), E (V,T) ou V(P,T). Cette relation thermodynamique reflète la nature des interactions entre atomes et les changements d'états microscopiques, comme la fusion, la métallisation, la dissociation des molécules ou encore la démixion de mélanges. Ces phénomènes se manifestent alors de manière macroscopique avec, par exemple, l'apparition de discontinuités et de changements de pente dans les plans V(P,T) ou E(V,T). Une équation d'état peut être en première approximation séparée en trois contributions, celles-ci différant suivant que l'on parte de la phase plasma ou de la phase solide.

Pour un plasma, l'énergie de référence est celle des électrons. L'énergie totale sera donc l'énergie des électrons à laquelle on ajoute la contribution des ions et une énergie de correction destinée à prendre en compte les intéractions quantiques (échange-corrélation) des électrons à basse température.

$$E = E_{electrons} + E_{ions} + E_{correction} \tag{1}$$

Pour un solide ou liquide, l'énergie de référence est l'énergie du système à température nulle. L'énergie et la pression sont donc représentées par une somme de 3 termes qui correspondent aux propriétés du corps lorsqu'il est froid et à l'agitation thermique des atomes et des électrons.

$$E = E_C + E_{Ta} + E_{Te} \tag{2}$$

$$P = P_C + P_{Ta} + P_{Te} \tag{3}$$

Lorsque la température est nulle, la pression P_C et l'énergie E_C ne sont gouvernées que par les forces d'interaction des atomes entre eux. A pression nulle, le corps est dans un état d'équilibre entre les forces de répulsion et les forces d'attraction et son énergie correspond au minimum du potentiel. Lorsque la température augmente, l'énergie libre du mouvement des atomes et de l'excitation des électrons doit être pris en compte. Cette excitation thermique entraîne l'ajout de deux termes correctifs E_{Ta} et E_{Te} pour les atomes et les électrons respectivement.

La figure 1 présente les différents états de la matière en fonction de la pression et de la température [1]. A température et pression normale, on rencontre la matière sous forme moléculaire. Lorsque la température augmente, ces molécules commencent, par agitation thermique, à entrer en contact les unes avec les autres et se dissocient alors en atomes. C'est ensuite au tour des électrons qui acquièrent suffisamment d'énergie cinétique pour se libérer de l'atome. On a alors un mélange électrons-ions partiellement ionisés. Le phénomène continue jusqu'à obtenir un mélange d'électrons et d'ions totalement ionisés très chauds. On parle alors de plasma cinétique.

La limite entre un comportement classique et un comportement quantique du gaz d'électrons est déterminée par l'énergie de Fermi à T=0K. Pour kT»ε_F où $\varepsilon_F = \frac{h^2}{2m_0} n^{2/3} \frac{(3\pi)^{2/3}}{4}$, le gaz d'électrons est considéré comme non dégénéré et son comportement est donc classique. Pour kT«ε_F, le gaz est dégénéré et les effects quantiques dominent.

Lorsque la pression augmente, les phénomènes sont un peu différents. Le confinement des atomes ne conduit pas à une stabilisation accrue de ceux-ci. Il faut faire appel à la physique quantique pour comprendre le comportement du système. A cause du principe d'incertitude, le confinement des électrons conduit à une augmentation de leur énergie cinétique. Pour diminuer cette énergie de confinement, les électrons se délocalisent. C'est la métallisation induite par pression.

Il apparaît dans ce schéma une zone définie par le cercle en pointillés appelée "Matière Dense et Chaude" ("Warm Dense Matter"). Cette zone apparaît comme une zone un peu critique car elle est

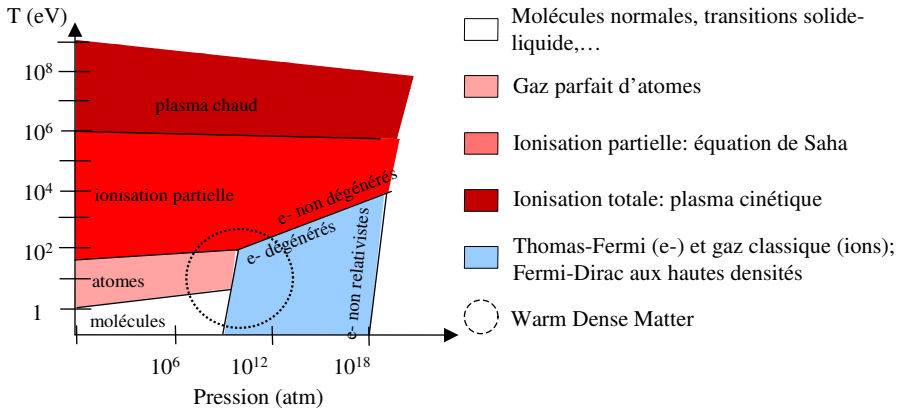


FIG. 1 – Diagramme Température-Pression [1]

située là où les théories, dites standards, de la physique de la matière condensée et de la physique statistique des plasmas ne sont plus valides. Elle est entre la matière froide et les plasmas chauds. Dans ce régime, les plasmas sont faiblement ionisés, fortement couplés et partiellement dégénérés. Aucune approximation n'est simple, rendant ainsi les études théoriques très compliquées.

On rencontre ce domaine lorsqu'on passe d'un matériau solide à un plasma, régime rencontré dans les expériences laser (Fusion par Confinement Inertiel), mais aussi dans le coeur des planètes géantes comme Jupiter et Saturne. Il apparaît indispensable d'apporter des données expérimentales quasi inexistantes pour le moment dans cette région de l'espace des phases pour contraindre les différentes théories.

Les approches expérimentales de la mesure EOS Deux principales approches existent pour comprimer la matière : l'approche statique où l'échantillon est maintenu sous pression et l'approche dynamique pour laquelle le matériau est mis sous pression par le passage d'une onde de choc. Le principe des méthodes statiques est de maintenir l'échantillon entre deux enclumes et de les rapprocher doucement pour ainsi diminuer le volume et augmenter la pression. Cette méthode a évolué progressivement au cours du temps grâce à l'utilisation de matériaux de plus en plus durs. P. W. Brigman fut le pionnier dans ce domaine et obtint le prix Nobel en 1946. Il avait pu atteindre alors 10 GPa avec des enclumes en carbure de tungstène. Lawson et Tang [2] furent les premiers à utiliser des enclumes en diamant. Cette évolution permit non seulement de repousser les limites des pressions atteintes, mais aussi les techniques d'analyse, car le diamant étant transparent sur un grand domaine de longueurs d'onde toutes les techniques de spectroscopie et de diffraction X pouvaient maintenant être utilisées. Les cellules à enclumes diamant sont maintenant l'outil de référence pour les études des hautes pressions. Couplées avec un système de chauffage résistif ou un chauffage laser, cette méthode permet de décrire un grand domaine du diagramme de phase.

Le principe de l'approche dynamique est de générer une onde de choc dans un échantillon le portant ainsi, pendant un court instant (quelques nanosecondes), à des pressions très élevées. Au contraire de l'approche statique, l'onde de choc n'augmente pas seulement la pression, mais elle augmente aussi la température. On passe donc très rapidement d'un milieu solide ou gazeux froid à un milieu sous très hautes pressions et hautes températures. Les pressions atteintes peuvent alors être très grandes, mais l'augmentation importante de la température limite le facteur de compression à 4 quel que soit le matériau étudié. L'ensemble des points atteints par cette méthode sont situés sur la courbe de l'adiabatique

dynamique, dite de Rankine Hugoniot, courbe unique déterminée par la pression et la densité initiale de l'échantillon.

La figure 3.3 récapitule l'ensemble des domaines pouvant être atteints par les méthodes statiques et les méthodes dynamiques pour l'hydrogène. La pression atteinte par la méthode statique comme nous

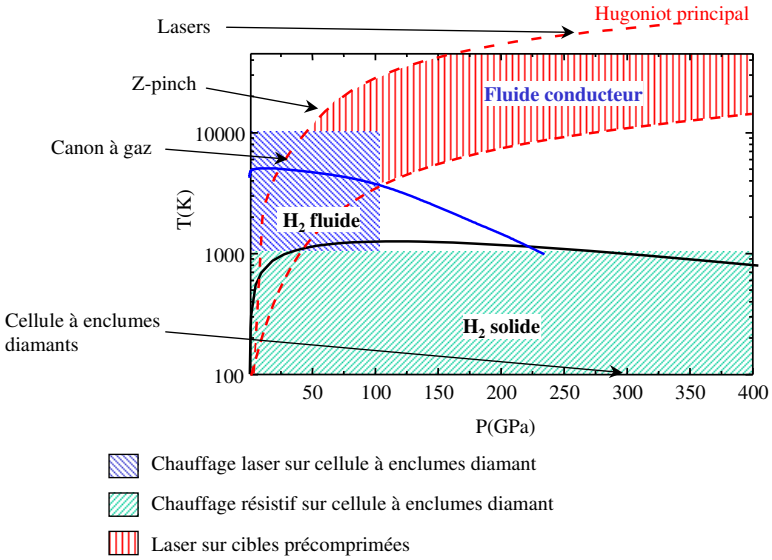


FIG. 2 – Domaines atteints par les méthodes statiques et dynamiques

l'avons dit précédemment est limitée par les matériaux utilisés. Cela correspond par exemple pour H_2 à un domaine allant de 0 à 3 Mbar. Cette méthode peut être couplée à un chauffage résistif ou laser permettant alors d'agrandir le domaine exploré. L'approche dynamique, elle, permet d'atteindre des domaines plus denses et plus chauds, mais elle est limitée car les points obtenus sont situés sur une courbe unique, la courbe d'Hugoniot. Cette courbe est déterminée par la densité et la pression initiales de l'échantillon. On peut donc imaginer, en changeant l'état initial, c'est à dire en précomprimant l'échantillon en statique, de pouvoir générer des Hugoniots secondaires et atteindre ainsi tout un nouveau domaine très dense et moins chaud que l'Hugoniot principale. Ce domaine est représenté en rouge hachuré sur la figure 2 pour une précompression de H_2 de 0.2 GPa à 20 GPa à 300K. Les facteurs de compression des méthodes statique et dynamique sont alors multipliés entre eux. Le tableau 3.1 illustre cela avec plusieurs systèmes pour lesquels cette méthode est très prometteuse. En particulier, pour H_2, un facteur de compression de 28 permettrait de mesurer l'état de l'hydrogène au centre de Jupiter.

élements	H_2	He	H_2O	LiH
compression statique (à 20 GPa)	7	6.5	2.7	2
compression dynamique* et statique	28	26	11	8

* = facteur de compression limite 4

TAB. 1 – Multiplication des facteurs de compression

But de la thèse Le couplage d'une approche statique et dynamique permet ainsi d'atteindre des domaines chauds et denses, domaines difficilement atteignables expérimentalement. Une première série d'expériences a été réalisée avec le laser Vulcan [3] et une énergie de 1kJ où une cellule à enclumes diamant a été adapté pour des chocs laser. Des premiers résultats ont ainsi été obtenus sur l'hydrogène.

La thèse a débuté après cette démonstration de faisabilité. La précision des mesures et le contrôle des barres d'erreur sont des impératifs pour la mesure d'une équation d'état. Une nouvelle métrologie basée sur le quartz a donc été développée dans le but de réduire au maximum ces barres d'erreur. Cette méthode a ensuite été appliquée aux mesures suivantes :

• *Hugoniot du diamant :* le carbone est l'un des éléments les plus abondants de l'univers. En phase condensée, il possède un polymorphisme très riche (graphite, diamant, nanotubes,...) Nous nous sommes intéressés à sa forme diamant et la stabilité de celle-ci le long de l'Hugoniot, en particulier quand et comment fond le diamant. Ces données sont indispensables pour les modèles des intérieurs des planètes comme Neptune ou Uranus [4, 5] ou d'autres objets astrophysiques comme les naines blanches.

• *Hugoniot de l'hélium à différentes précompressions :* l'hélium, en plus de son intérêt astrophysique (constituant principal avec l'hydrogène de Jupiter et Saturne) et fondamental (il est l'élément le plus simple après l'hydrogène), est idéal pour valider la métrologie du quartz. En effet les effets électroniques apparaissent à plus hautes pressions et températures que dans l'hydrogène et il n'y a pas de phénomène de dissociation.

• *Hugoniot de l'hydrogène à différentes précompressions :* l'hydrogène est l'élément le plus simple que l'on puisse trouver dans la nature et pourtant le moins bien compris. Il a ainsi un intérêt fondamental majeur, en particulier pour comprendre les effets many-body de la densité.

• *Hugoniot d'un mélange Hydrogène/Hélium :* les mélanges Hydrogène/Hélium et leur miscibilité sont la source de nombreuses discussions dans le domaine astrophysique. Saturne présente un excès de luminosité laissant supposer l'existence d'une source interne de chaleur. Cette énergie pourrait provenir d'une séparation de phase entre l'hydrogène et l'hélium mais il n'existe pour le moment aucune donnée dans ce domaine pour vérifier ces modèles.

Dans le premier chapitre, nous présenterons la description du comportement dynamique de la matière sous choc. La modélisation de l'équation d'état sera abordée dans le chapitre 2 avec quelques modèles génériques qui permettent de comprendre semi-quantitativement les différents domaines de validité et les difficultés d'une description quantitative. Dans les chapitres suivants, nous nous intéresserons à l'aspect expérimental et à la réalisation des mesures. Nous verrons les chocs sur cibles précomprimées (chapitre 3), la mesure des vitesses de choc (chapitre 4), le développement de la nouvelle métrologie basée sur le quartz (chapitre 5) et enfin les lasers de puissance et le dimensionnement des expériences (chapitre 6). Les derniers chapitres seront consacrés à chaque système étudié : le diamant (chapitre 7), l'hélium (chapitre 8), l'hydrogène (chapitre 9) et les mélanges hydrogène/hélium (chapitre 10). Dans la conclusion, les grands résultats seront rappelés et les perspectives seront présentées.

Deuxième partie

Approche théorique

Chapitre 1

Comportement dynamique : les relations utiles

Sommaire

1.1 Les équations fluides **10**
1.1.1 Conservation de la masse 10
1.1.2 Conservation de l'impulsion 10
1.1.3 Conservation de l'énergie 11
1.2 Propagation des ondes sonores **11**
1.3 Invariants de Riemann : comportement dynamique le long de l'isentrope **13**
1.4 Formation de l'onde de choc **14**
1.5 Relation de Rankine-Hugoniot **15**
1.5.1 Conservation de la masse 15
1.5.2 Conservation de l'impulsion 16
1.5.3 Conservation de l'énergie 16
1.6 Calcul de la variation d'entropie lors du passage d'une onde de choc **16**
1.6.1 L'entropie croît le long de l'Hugoniot 16
1.6.2 Remarque sur l'augmentation d'entropie 17
1.6.3 L'Hugoniot est différente de l'isentrope seulement au 3ème ordre au niveau du pôle 18
1.7 Calcul pour un gaz parfait **19**
1.8 Evolution de la température le long de l'Hugoniot **19**
1.8.1 Cas du gaz parfait 20
1.8.2 Modèle de Grüneisen 20
1.9 Onde de relaxation **20**
1.10 Cas d'une onde de choc dans un solide **22**
1.10.1 L'onde élastique 22
1.10.2 Correction de résistance 23

Dans ce premier chapitre, nous allons nous intéresser à la matière sous choc. Nous identifierons alors les principales relations qui vont gouverner son comportement et qui sont ainsi indispensables pour la conception, mais aussi l'interprétation des expériences.

1.1 Les équations fluides

C'est à partir des équations fluides qui décrivent un fluide/gaz en mouvement que les équations de propagation des ondes ont été construites.

L'état d'un élément de fluide peut être décrit par sa vitesse $\overrightarrow{u}$, sa densité ρ et sa pression P en fonction de sa position $\overrightarrow{r}$et du temps.

1.1.1 Conservation de la masse

On définit $\rho = \rho(\overrightarrow{r}, t)$ comme la densité de masse à un point donné $(\overrightarrow{r}, t)$ et ayant une vitesse $\overrightarrow{u}(\overrightarrow{r}, t)$. La variation de masse par unité de temps, donnée par :

$$\frac{\partial}{\partial t}\int_V \rho dV \tag{1.1}$$

est égale au flux entrant et sortant de matière :

$$-\oint_S \rho \overrightarrow{u}\, d\overrightarrow{A} \tag{1.2}$$

où S est la surface extérieure du volume V. Ce qui donne :

$$\frac{\partial}{\partial t}\int_V \rho dV + \oint_S \rho \overrightarrow{u}\, d\overrightarrow{A} = 0 \tag{1.3}$$

D'après le théorème de Gauss :

$$\frac{\partial}{\partial t}\int_V \rho dV + \int_V \overrightarrow{\nabla}.(\rho \overrightarrow{u}) dV = 0 \tag{1.4}$$

Comme l'expression 1.4 est valable pour n'importe quel volume, on peut finalement écrire la forme plus connue de l'équation de conservation de la masse :

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \overrightarrow{\nabla}.(\rho \overrightarrow{u}) = 0 \tag{1.5}$$

1.1.2 Conservation de l'impulsion

Il est plus commode pour établir cette équation de considérer un volume en mouvement dans lequel la quantité de matière reste constante. On définit alors $\frac{\partial}{\partial t}$ comme la dérivée partielle par rapport au temps à un endroit donné et $\frac{D}{Dt}$ comme la dérivée totale décrivant le changement par rapport au temps d'une particule en mouvement. Ces deux dérivées sont reliées par la relation :

$$\frac{D}{Dt} = \frac{\partial}{\partial t} + \overrightarrow{u}.\overrightarrow{\nabla} \tag{1.6}$$

On peut alors écrire la loi de Newton :

$$\int_V \rho \frac{D\overrightarrow{u}}{Dt} dV = \oint_S f d\overrightarrow{A} + \int_V \overrightarrow{F} dV \tag{1.7}$$

où f est le tenseur des forces surfaciques et $\overrightarrow{F}$ représente le vecteur des forces volumiques. En négligeant la viscosité, f se réduit aux forces exercées par la pression.

$$\oint_S f d\overrightarrow{A} = -\oint_S P dA_i = -\int_V \frac{\partial P}{\partial x_i} dV = -\int_V \overrightarrow{\nabla} P dV \tag{1.8}$$

$\overrightarrow{F}$ représente toutes les forces qui pourraient agir sur l'élément considéré (électriques, gravitationnelles,...). On va considérer dans notre cas que l'ensemble de ces forces sont nulles. En remplaçant chaque terme par sa forme simplifiée et en utilisant le fait que les équations précédentes sont valables pour un volume arbitraire, l'équation 1.7 prend la forme suivante plus connue sous le nom d'équation d'Euler :

$$\rho\frac{\partial\overrightarrow{u}}{\partial t}+\rho(\overrightarrow{u}.\overrightarrow{\nabla})\overrightarrow{u}=-\overrightarrow{\nabla}P \tag{1.9}$$

1.1.3 Conservation de l'énergie

On se place dans le référentiel du fluide en mouvement. La variation d'énergie du fluide est donnée par le taux de changement de son énergie cinétique et de son énergie interne, soit :

$$\int_V \rho\frac{Du^2/2}{Dt}dV+\int_V \rho\frac{D\varepsilon}{Dt}dV \tag{1.10}$$

Cette variation est compensée par des sources extérieures Q_{ex} que l'on considère nulles pour notre étude, par l'énergie rentrant par conduction thermique Q_H que l'on considère aussi nulle et le travail par unité de temps des forces surfaciques W_f et volumiques W_F. Comme précédemment, $\overrightarrow{F}=0$, donc $W_F=0$

$$W_f=\oint_S \overrightarrow{u}.f.d\overrightarrow{A}=-\oint_S P\overrightarrow{u}.d\overrightarrow{A} \tag{1.11}$$

soit

$$W_f=\int_V \overrightarrow{\nabla}.(P\overrightarrow{u})dV \tag{1.12}$$

L'équation de conservation de l'énergie s'écrit alors :

$$\rho\frac{D}{Dt}(\varepsilon+\frac{1}{2}u^2)=-\overrightarrow{\nabla}.(P\overrightarrow{u}) \tag{1.13}$$

1.13 devient en utilisant 1.6 et 1.5 :

$$\frac{\partial}{\partial t}\left[\rho(\varepsilon+\frac{1}{2}u^2)\right]=-\overrightarrow{\nabla}.[\rho\overrightarrow{u}(\varepsilon+\frac{1}{2}u^2)+P\overrightarrow{u}] \tag{1.14}$$

CQFR : Les équations de conservation de la masse $\frac{\partial\rho}{\partial t}+\overrightarrow{\nabla}.(\rho\overrightarrow{u})=0$, du moment $\rho\frac{\partial\overrightarrow{u}}{\partial t}+\rho(\overrightarrow{u}.\overrightarrow{\nabla})\overrightarrow{u}=-\overrightarrow{\nabla}P$ et de l'énergie $\frac{\partial}{\partial t}[\rho(\varepsilon+\frac{1}{2}u^2)]=-\overrightarrow{\nabla}.[\rho\overrightarrow{u}(\varepsilon+\frac{1}{2}u^2)+P\overrightarrow{u}]$ forment les équations de base pour étudier la physique des ondes sonores.

1.2 Propagation des ondes sonores

Pour plus de simplicité, nous ne travaillerons maintenant qu'à une dimension avec des ondes planes. On peut donc écrire : $u(x,t)$, $\rho(x,t)$ et $P(x,t)$. Une onde sonore représente la propagation d'une petite variation de pression qui entraîne une variation de densité et une variation de vitesse. ΔP et $\Delta\rho$ sont considérées comme très petites devant la pression P_0 et la densité d'équilibre ρ_0.

$$\rho=\rho_0+\Delta\rho \tag{1.15}$$

$$P=P_0+\Delta P \tag{1.16}$$

avec $\frac{\Delta\rho}{\rho_0} << 1$ et $\frac{\Delta P}{P_0} << 1$. On considère que la vitesse initiale du fluide est nulle. On peut donc écrire que :

$$u = u_0 + \Delta u = \Delta u \tag{1.17}$$

avec $\frac{\Delta u}{c} << 1$ où c va être défini plus tard. On rentre alors ces expressions dans les équations de conservation de la masse et du moment.

$$\frac{\partial(\rho_0 + \Delta\rho)}{\partial t} + \frac{\partial((\rho_0 + \Delta\rho)u)}{\partial x} = 0 \tag{1.18}$$

$$(\rho_0 + \Delta\rho)\frac{\partial u}{\partial t} + (\rho_0 + \Delta\rho)\left(u\frac{\partial}{\partial x}\right)u = -\frac{\partial \Delta P}{\partial x} \tag{1.19}$$

Cela donne au premier ordre :

$$\frac{\partial \Delta\rho}{\partial t} = -\rho_0\frac{\partial u}{\partial x} \tag{1.20}$$

$$\rho_0\frac{\partial u}{\partial t} = -\frac{\partial \Delta P}{\partial x} \tag{1.21}$$

Dans le cas d'une onde sonore, les échanges de chaleur n'ayant pas le temps de se faire et les variations étant réversibles, on considère que le mouvement d'une particule est isentropique. On définit alors :

$$\Delta P = \left(\frac{\partial P}{\partial \rho}\right)_S \Delta\rho \equiv c^2\Delta\rho \tag{1.22}$$

On différencie 1.20 par rapport au temps et 1.21 par rapport à x et en utilisant la définition de c, équation 1.22, on trouve :

$$\frac{\partial^2(\Delta\rho)}{\partial t^2} = c^2\frac{\partial^2(\Delta\rho)}{\partial x^2} \tag{1.23}$$

On reconnaît alors l'équation de propagation d'une onde. La variation de densité $\Delta\rho$ se déplace à la vitesse c que l'on définit comme la vitesse de propagation de l'onde sonore.

$$c = \sqrt{\left(\frac{\partial P}{\partial \rho}\right)_S} \tag{1.24}$$

Il existe deux familles de solutions à cette équation de propagation : f(x-ct) et g(x-ct). f(x-ct) représente une onde se propageant dans la direction des x positifs et g(x-ct) dans la direction des x négatifs. Si le fluide n'est pas au repos au départ, mais est animé d'une vitesse constante u (dirigé vers +x dans notre étude), les ondes sont alors portés par ce fluide en mouvement. Leur vitesse est alors dans le référentiel du laboratoire égale à u+c pour les ondes allant vers les x positifs et u-c pour les ondes allant vers les x négatifs. On définit alors dans le plan x-t, deux principales familles de courbes, appelées courbes caractéristiques telles que :

$$C_+ := \frac{dx}{dt} = u(x,t) + c(x,t) \tag{1.25}$$

$$C_- := \frac{dx}{dt} = u(x,t) - c(x,t) \tag{1.26}$$

CQFR : Une onde sonore représente ainsi la propagation d'une petite variation de pression se manifestant par une petite variation de densité et de vitesse. Cette onde est solution de l'équation de propagation $\frac{\partial^2(\Delta\rho)}{\partial t^2} = c^2\frac{\partial^2(\Delta\rho)}{\partial x^2}$ et se déplace à la vitesse c, définie comme $c = \sqrt{\left(\frac{\partial P}{\partial \rho}\right)_S}$.

1.3 Invariants de Riemann : comportement dynamique le long de l'isentrope

Avant d'aller plus loin dans l'analyse de ces résultats, un petit rappel mathématique s'impose. Si on définit une courbe, $x = \phi(t)$, dans le plan x-t, la dérivée d'une fonction quelconque f(x,t) le long de la courbe $x = \phi(t)$ est donnée par :

$$\left(\frac{df}{dt}\right)_{\phi} = \frac{\partial f}{\partial t} + \frac{\partial f}{\partial x}\frac{dx}{dt} = \frac{\partial f}{\partial t} + \frac{\partial f}{\partial x}\phi' \tag{1.27}$$

Comme le processus est isentropique, la densité n'est qu'une fonction de la pression et on peut exprimer les dérivées les unes par rapport aux autres.

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = \left(\frac{\partial \rho}{\partial P}\right)_S \frac{\partial P}{\partial t} = \frac{1}{c^2}\frac{\partial P}{\partial t} \tag{1.28}$$

de même pour la dérivée de ρ par rapport à x. On substitue ces expressions dans les équations de conservation de la masse et du moment et en additionnant et en soustrayant ensuite les deux équations entre elles, on trouve :

$$\left[\frac{\partial u}{\partial t} + (u+c)\frac{\partial u}{\partial x}\right] + \frac{1}{\rho c}\left[\frac{\partial P}{\partial t} + (u+c)\frac{\partial P}{\partial x}\right] = 0 \tag{1.29}$$

$$\left[\frac{\partial u}{\partial t} + (u-c)\frac{\partial u}{\partial x}\right] + \frac{1}{\rho c}\left[\frac{\partial P}{\partial t} + (u-c)\frac{\partial P}{\partial x}\right] = 0 \tag{1.30}$$

En se souvenant du rappel mathématique fait précédemment, on remarque que les équations 1.29 et 1.30 sont des dérivées suivant les courbes C_+ et C_-. On peut les réécrire de la manière suivante :

$$dJ_+ \equiv du + \frac{1}{\rho c}dP = 0 \tag{1.31}$$

$$dJ_- \equiv du - \frac{1}{\rho c}dP = 0 \tag{1.32}$$

suivant C_+ et C_- respectivement. Si on intègre ces équations, on trouve alors :

$$J_+ = u + \int \frac{dP}{\rho c} = u + \int c\frac{d\rho}{\rho} \tag{1.33}$$

$$J_- = u - \int \frac{dP}{\rho c} = u - \int c\frac{d\rho}{\rho} \tag{1.34}$$

J_+ et J_- sont appelés les invariants de Riemann. Ces équations sont bien sûr valables seulement pour des écoulements isentropiques. Si ce n'est pas le cas, ces invariants perdent alors leur signification physique. Il est important de remarquer que ces invariants ont été définis à partir des équations initiales de conservation de la masse et du moment. Aucune approximation, à part celle d'isentropicité, à quelque ordre que ce soit n'a été faite.

Application au gaz parfait Calculons les invariants de Riemann pour un gaz parfait. L'équation d'état pour un gaz parfait dans un processus adiabatique est :

$$P = P_0\left(\frac{\rho}{\rho_0}\right)^{\gamma} \tag{1.35}$$

où γ est le rapport C_p/C_v. En utilisant 1.24, on trouve :

$$\frac{c}{c_0} = \left(\frac{\rho}{\rho_0}\right)^{\frac{\gamma-1}{2}} \tag{1.36}$$

avec c_0 la vitesse du son lorsque $u = 0$, $c_0 = \left(\frac{\gamma P_0}{\rho_0}\right)^{1/2}$. D'après 1.33 et 1.34, on obtient :

$$J_\pm = u \pm \frac{2}{\gamma - 1}(c - c_0) \tag{1.37}$$

J est déterminé à une constante arbitraire près qui dans le cas précédent a été choisie égale à c_0.

CQFR : Les invariants de Riemann permettent d'établir une relation entre les grandeurs ρ, c et u dans un processus isentropique.

1.4 Formation de l'onde de choc

Les ondes sonores, caractérisées comme nous venons de le voir par la propagation de petites quantités comme $\Delta\rho$ et ΔP, évoluent avec le temps et peuvent devenir discontinues. Ces discontinuités sont le résultat du caractère non linéaire des équations de conservation de la masse et du moment. Pour établir les équations d'onde, tous les calculs ont été fait au premier ordre éliminant ainsi leur apparition. Cependant pour comprendre la formation de l'onde de choc, la non-linéarité des équations ne peut plus être négligée. Nous ne rentrerons pas dans le détail des équations, mais nous allons essayer de voir qualitativement ce qui se passe à partir des résultats précédents.

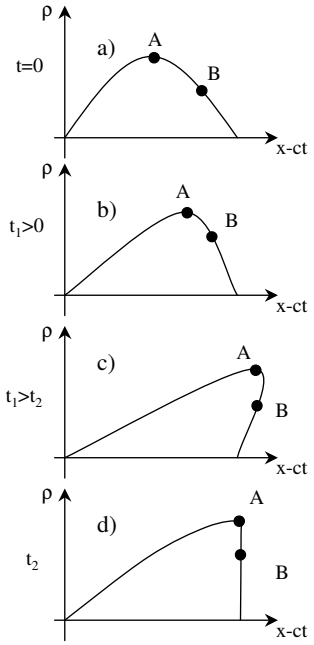


FIG. 1.1 – Processus de formation de l'onde de choc :a) Profil de l'onde au temps t=0. b) D'après la définition de la vitesse du son, pour un gaz parfait, plus la densité est élevée, plus le point se déplace vite. Le point A se déplace donc plus vite que le point B et l'onde commence à se déformer. c) Si on continue le raisonnement, le point A va dépasser le point B, situation physique impossible car il y aurait alors plusieurs densités possibles pour le même point. d) Le front se raidit donc pour former un profil vertical. Aucun point ne peut dépasser ce front.

Prenons l'exemple du gaz parfait. Nous avons vu que la vitesse de propagation des ondes (équation 1.36) croît avec la densité du milieu. On considère un milieu qui, au temps $t = 0$, a un profil de densité comme montré sur la figure 1.1a. Le point A a une densité plus élevée que le point B. La vitesse du son

au point A est donc supérieure à celle au point B et la distance parcourue jusqu'au temps t_1 par A est donc supérieure à celle parcourue par B. L'onde se déforme alors (figure 1.1b). Le phénomène continue jusqu'à ce que le point A dépasse le point B (figure 1.1c). La situation n'est alors plus physique. En effet pour le même point de l'espace, deux densités sont possibles. Cette situation ne sera donc jamais atteinte. Au lieu de cela, le profil de l'onde se raidit et tous les points "s'accumulent" en tête de l'onde formant ainsi une discontinuité (figure 1.1d). Ce type de discontinuités est appelé une onde de choc.

CQFR : Une onde de choc est la conséquence de la non linéarité des équations de propagations. Elle se forme dès qu'on s'éloigne du domaine linéaire et se caractérise par une discontinuité de densité et de pression dans le milieu.

1.5 Relation de Rankine-Hugoniot

Nous allons maintenant nous intéresser aux conséquences de l'apparition d'une telle onde dans le milieu. On imagine un piston qui se déplace vers la droite à une vitesse u et comprime la matière. Nous supposerons donc que l'onde de choc est déjà formée et qu'elle se propage à une vitesse D. A droite de l'onde de choc le matériau est encore dans son état initial P_0, ρ_0 et E_0. Après le passage de l'onde de choc, le milieu est caractérisé par P, ρ et E. La situation est illustrée figure 1.2.

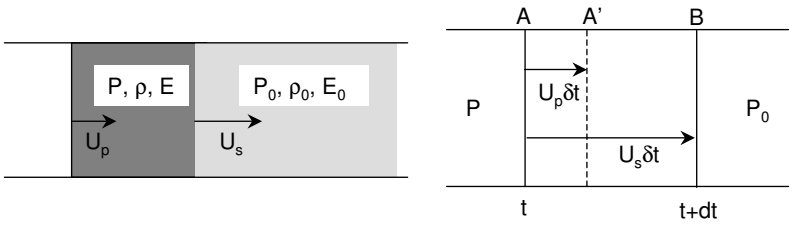


FIG. 1.2 – Passage d'une onde de choc

Comme pour la formation de l'onde sonore, trois relations de conservation permettent d'écrire les équations décrivant la discontinuité thermodynamique au passage de l'onde de choc.

1.5.1 Conservation de la masse

On considère la masse comprise entre les points A et B au temps t. Au temps t+δt, la surface au point A s'est déplacée et est maintenant au point A'. Comme il y a conservation de la masse, on peut écrire :

$$m = \rho_0 ABS = \rho A'BS \tag{1.38}$$

où S est la surface de la section considérée. En remplaçant AB et A'B par leurs expressions en fonction des vitesses particules et des vitesses de choc, on obtient :

$$\rho_0 U_s \delta t S = \rho(U_s \delta t - U_p \delta t)S \tag{1.39}$$

soit :

$$\rho(U_s - U_p) = \rho_0 U_s \tag{1.40}$$

1.5.2 Conservation de l'impulsion

La pression exerce de chaque côté de l'élément AB une force $(P - P_0)S$. La masse m a donc acquis une impulsion dp égale à :

$$dp = mU_p = (P - P_0)S\delta t \tag{1.41}$$

$$S\delta t\rho_0 U_s U_p = (P - P_0)S\delta t \tag{1.42}$$

ce qui donne :

$$\rho_0 U_s U_p = P - P_0 \tag{1.43}$$

1.5.3 Conservation de l'énergie

Pour boucler les équations, il ne reste plus qu'à considérer la conservation de l'énergie. L'énergie reçue par l'élément AB pendant l'intervalle δt est égale au travail des forces extérieures. Le travail qui intervient est celui provenant de la face A qui se déplace en A', soit $PSu\delta t$. Ce travail est égal à la variation d'énergie interne du milieu et à l'énergie cinétique du milieu.

$$\rho_0 SU_s\delta t(E - E_0 + \frac{1}{2}U_p^2) = PSU_p\delta t \tag{1.44}$$

$$\rho_0 U_s(E - E_0 + \frac{1}{2}U_p^2) = PU_p \tag{1.45}$$

En utilisant 1.40 et 1.43, on trouve :

$$E - E_0 = \frac{1}{2}(P + P_0)(v_0 - v) \tag{1.46}$$

où v est le volume ; $v = \frac{1}{\rho}$.

CQFR : Les équations de conservation de la masse, de l'impulsion et de l'énergie

$$\rho(U_s - U_p) = \rho_0 U_s,$$
$$\rho_0 U_s U_p = P - P_0,$$
$$E - E_0 = \tfrac{1}{2}(P + P_0)(v_0 - v),$$

constituent les équations de Rankine-Hugoniot et sont la base des relations de chocs pour un choc plan dans un fluide.

1.6 Calcul de la variation d'entropie lors du passage d'une onde de choc

1.6.1 L'entropie croît le long de l'Hugoniot

On considère la relation fondamentale :

$$TdS = dE + pdv \tag{1.47}$$

En différenciant 1.46 et en utilisant 1.47, on trouve le long de l'Hugoniot :

$$TdS = \frac{1}{2}(p - p_0)(v_0 - v)\left(\frac{dp}{p - p_0} + \frac{dv}{v_0 - v}\right) \tag{1.48}$$

En utilisant 1.40 et 1.43, on peut exprimer U_p en fonction de p et v uniquement.

$$U_p^2 = (p - p_0)(v_0 - v) \tag{1.49}$$

On pose :

$$m = \frac{p - p_0}{v_0 - v} = \rho_0^2 U_s^2 \tag{1.50}$$

d'après 1.40 et 1.43. Donc :

$$\frac{dm}{m} = \frac{dp}{p - p_0} + \frac{dv}{v_0 - v} = 2\frac{dU_s}{U_s} \tag{1.51}$$

En regroupant alors 1.47, 1.49 et 1.51, on trouve finalement :

$$TdS = \frac{1}{2}u^2\frac{dm}{m} = u^2\frac{dU_s}{U_s} \tag{1.52}$$

d'où :

$$\left(\frac{dS}{dU_s}\right)_H > 0 \tag{1.53}$$

L'entropie augmente donc le long de l'Hugoniot. La transformation engendrée par le passage de l'onde de choc est irreversible. La matière ne pourra jamais revenir à son état initial.

1.6.2 Remarque sur l'augmentation d'entropie

La conséquence de cette augmentation d'entropie est qu'une partie de l'énergie est perdue et restera sous forme de chaleur. Cette chaleur a été produite dans l'épaisseur du front de choc dont nous n'avons pas parlé car son épaisseur est négligeable (de 10 à 100 angström). Cependant la conductivité thermique et la viscosité des matériaux sont des phénomènes toujours présents et ce sont eux qui, dans le front de choc, créent cette chaleur. On peut essayer par un simple raisonnement graphique de quantifier cette perte (figure 1.3).

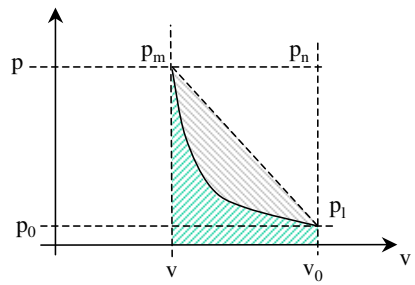


FIG. 1.3 – Perte d'énergie le long de l'Hugoniot

La variation d'énergie comme nous l'avons vu est déterminée par 1.46 que l'on peut réécrire sous la forme :

$$E - E_0 + \frac{1}{2}U_p^2 = p(v_0 - v) \tag{1.54}$$

D'après 1.40 et 1.43 :

$$\frac{1}{2}U_p^2 = \frac{1}{2}(p - p_0)(v_0 - v) \tag{1.55}$$

ce qui correspond sur la figure 1.3 à l'aire du triangle $P_m P_n P_l$. $p(v_0 - v)$ correspond au rectangle $v_0 v P_m P_n$. La variation d'énergie interne est donc égale au trapèze $v_0 v P_m P_l$. Cette énergie se décompose elle même en deux parties : énergie de compression et perte par entropie.

$$E - E_0 = \int_H -pdv + \int_H TdS \tag{1.56}$$

$\int_H -pdv$ est représentée par l'aire sous la courbe d'Hugoniot (aire hachurée en vert). $\int_H TdS$ représente donc l'énergie restante perdue par entropie qui sur la figure correspond à l'aire hachurée en gris. On peut voir que plus l'Hugoniot est "droite", plus les pertes vont être réduites.

1.6.3 L'Hugoniot est différente de l'isentrope seulement au 3ème ordre au niveau du pôle

On dérive 1.47 2 fois par rapport à v.

$$T\frac{d^2S_H}{dv^2} + \frac{dS_H}{dv}\frac{dT_H}{dv} = \frac{1}{2}(v_0 - v)\frac{d^2p_H}{dv^2} \tag{1.57}$$

Donc, d'après 1.48 et 1.57, en $v = v_0$, on a :

$$\left(\frac{dS_H}{dv}\right)_{v_0} = 0 \tag{1.58}$$

et

$$\left(\frac{d^2S_H}{dv^2}\right)_{v_0} = 0 \tag{1.59}$$

On dérive alors une seconde fois 1.57 par rapport à v.

$$T\frac{d^3S_H}{dv^3} + 2\frac{d^2S_H}{dv^2}\frac{dT_H}{dv} + \frac{dS_H}{dv}\frac{d^2T_H}{dv^2} = -\frac{1}{2}\frac{d^2p_H}{dv^2} + \frac{1}{2}(v_0 - v)\frac{d^3p_H}{dv^3} \tag{1.60}$$

On obtient alors :

$$T_0\left(\frac{d^3S_H}{dv^3}\right)_{v_0} = -\frac{1}{2}\left(\frac{d^2p_H}{dv^2}\right)_{v_0} \tag{1.61}$$

Le développement limité de S_H au voisinage de v_0 s'écrit donc de la manière suivante :

$$S_H(v) = S_0 + \frac{(v_0 - v)^3}{12T_0}\left(\frac{d^2p_S}{dv^2}\right)_0 + ... \tag{1.62}$$

L'entropie le long de l'Hugoniot ne diffère donc qu'à l'ordre 3 au voisinage de v_0. On peut donc imaginer pour suivre un comportement isentropique une succession de petits chocs de faibles intensités.

CQFR : Le passage d'une onde de choc dans un milieu est caractérisé par une augmentation d'entropie. La transformation engendrée est donc irréversible. Une partie de l'énergie est ainsi perdue sous forme de chaleur au niveau du front de choc. Cette perte est directement liée à la viscosité et à la conductivité thermique du matériau.

Cependant, l'Hugoniot est différente de l'isentrope seulement au troisième ordre. On peut donc se rapprocher d'un comportement isentropique par une succession de chocs de faible intensité.

1.7 Calcul pour un gaz parfait

Comme nous l'avons fait pour les ondes sonores, essayons d'appliquer ces résultats à un gaz parfait pour mieux comprendre ce qui se passe. Rappelons l'équation d'un gaz parfait :

$$E = \frac{pv}{\gamma - 1} \tag{1.63}$$

En remplaçant 1.63 dans 1.46, on obtient l'expression de la pression en fonction de volume uniquement.

$$\frac{p}{p_0} = \frac{(\gamma+1)v_0 - (\gamma-1)v}{(\gamma+1)v - (\gamma-1)v_0} \tag{1.64}$$

L'asymptote verticale à la courbe figure 1.4 est :

$$\frac{v}{v_0} = \frac{\gamma - 1}{\gamma + 1} \tag{1.65}$$

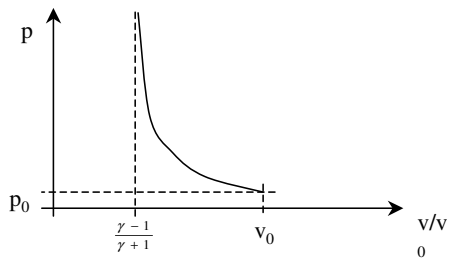


FIG. 1.4 – Courbe d'Hugoniot pour un gaz parfait

On peut voir que la matière ne se comprimera pas indéfiniment, mais va atteindre un taux de compression maximum égal à : $\frac{\gamma-1}{\gamma+1}$. Pour un gaz monoatomique, $\gamma = 5/3$ ce qui entraîne un compression maximum égal à 4.

Pour un gaz parfait, l'entropie est égale à :

$$S = c_v ln(pv^\gamma) + S_0 \tag{1.66}$$

où c_v est la chaleur spécifique à volume constant et est égale à :

$$c_v = \frac{pv}{(\gamma-1)T} = \frac{R}{\gamma - 1} \tag{1.67}$$

Ce qui donne :

$$S - S_0 = c_v ln \frac{pv^\gamma}{p_0 v_0^\gamma} \tag{1.68}$$

On voit que si le choc est faible, le saut d'entropie est aussi très faible ce que nous avions montré précédemment avec les dérivées successives.

1.8 Evolution de la température le long de l'Hugoniot

Les relations de Rankine Hugoniot permettent de déterminer la pression et la densité du matériau. Cependant pour avoir un point complet d'équation d'état, il faut aussi connaître la température qui, elle, n'intervient pas dans les équations de choc. Si elle ne peut pas être mesurée en même temps que les autres grandeurs pendant l'expérience, il est alors nécessaire de faire des hypothèses sur l'équation d'état du matériau pour pouvoir la déterminer.

1.8.1 Cas du gaz parfait

Pour un gaz parfait on a :

$$PV = NkT \tag{1.69}$$

En utilisant cette expression et 1.64, on trouve :

$$T_H = \frac{1}{Nk}\frac{(\gamma+1)v_0-(\gamma-1)v}{(\gamma+1)v-(\gamma-1)v_0} = \frac{T_0}{P_0v_0}\frac{(\gamma+1)v_0-(\gamma-1)v}{(\gamma+1)v-(\gamma-1)v_0} \tag{1.70}$$

1.8.2 Modèle de Grüneisen

En anticipant sur le paragraphe concernant les équations d'état, on peut déterminer l'évolution de la température pour un modèle de Grüneisen. Celui-ci considère que l'on peut relier la pression et l'énergie par un coefficient g ne dépendant que de V :

$$g = V\left(\frac{dP}{dE}\right)_V \tag{1.71}$$

En partant de l'expression :

$$dT = \left(\frac{\partial T}{\partial V}\right)_S dV + \left(\frac{\partial T}{\partial S}\right)_V dS \tag{1.72}$$

on peut montrer que :

$$\frac{dT_H}{dV} + \frac{g}{V}T_H + \frac{q_H}{c_v} = 0 \tag{1.73}$$

avec $q_H = -\frac{dS_H}{dV} = -P_H - \frac{dE_H}{dV}$.

CQFR : La température est la seule donnée qui n'apparaît pas dans les équations de Rankine-Hugoniot. Il est donc nécessaire de faire des hypothèses sur l'équation d'état du matériau pour la déterminer.

1.9 Onde de relaxation

Une onde de choc apporte un saut de pression et un saut de densité dans le milieu. Une onde de relaxation (ou raréfaction ou détente) apporte une diminution de la pression et de la densité. On peut imaginer un piston qui, au lieu de se déplacer vers la droite (figure 1.2) et comprimer la matière, va se déplacer vers la gauche. La matière va se détendre de manière isentropique pour atteindre un état moins dense.

Un comportement isentropique est comme nous l'avons vu précédemment décrit par les invariants de Riemann qui relient la densité, la vitesse de la matière et la vitesse du son.

$$u - u_0 = \pm\int_P^{P_0}\frac{dP}{\rho c} \tag{1.74}$$

En utilisant 1.37, on trouve pour un gaz parfait :

$$J = u - \frac{2}{\gamma-1}(c-c_0) = u_0 \tag{1.75}$$

soit :

$$c = c_0 + \frac{1}{2}(\gamma-1)(u-u_0) \tag{1.76}$$

En utilisant 1.76, 1.36 et le fait que $c^2 = \frac{\gamma P}{\rho}$, on peut relier la densité et la pression p à la vitesse u. On a alors :

$$\frac{p}{p_0} = \left(1 + \frac{1}{2}(\gamma - 1)\frac{u - u_0}{c_0}\right)^{\frac{2\gamma}{\gamma-1}} \tag{1.77}$$

Cette relation entre la pression et la vitesse matérielle u est très utile lors des expériences comme nous le verrons plus tard. Malheureusement, le matériau utilisé ne peut pas forcément être considéré comme un gaz parfait et la relation p(u) pour une onde de détente pour un matériau quelconque est plus difficile à exprimer. D'après 1.24 :

$$\rho c = \sqrt{-\left(\frac{dp}{dv}\right)_S} \tag{1.78}$$

On obtient alors l'expression valable pour tout matériau :

$$u = u_0 + \int_p^{p_0} \sqrt{-\left(\frac{dv}{dp}\right)_S} dp \tag{1.79}$$

Approximation de l'hugoniot symétrique On a vu précédemment que pour un choc faible l'entropie ne variait quasiment pas (déviation au 3eme ordre). On peut donc remplacer la dérivée de p par rapport à v le long de l'isentrope par la dérivée le long de l'Hugoniot, parcourue à l'envers. Soit :

$$u = u_0 + \int_p^{p_0} \sqrt{\left(-\frac{dv}{dp}\right)_H} dp \tag{1.80}$$

En combinant 1.40 et 1.43, on peut exprimer l'expression de la dérivée $\left(\frac{dv}{dp}\right)_H$:

$$v_0 - v = \frac{u^2}{p - p_0} \tag{1.81}$$

$$-\frac{dv}{dp} = \frac{d}{dp}\left(\frac{u^2}{p - p_0}\right) \tag{1.82}$$

Pour un choc faible, on peut considérer que la densité est constante et que $c = c_0$. On a donc :

$$p - p_0 \simeq \rho_0 c_0 u \tag{1.83}$$

Ce qui donne :

$$\sqrt{-\frac{dv}{dp}} = \frac{1}{\rho_0 c_0} \tag{1.84}$$

et donc 1.80 devient :

$$u = u_0 + \frac{p_0 - p}{\rho_0 c_0} \tag{1.85}$$

Au même niveau d'approximation, on a :

$$\rho_0 c_0 \simeq \frac{p_0 - p}{u_0 - u_H} \tag{1.86}$$

où u_H est la vitesse fluide le long de l'hugoniot principale. Ce qui donne finalement :

$$u(p) = u_0 + u_0 - u_H(p) = 2u_0 - u_H(p) \tag{1.87}$$

On reconnaît alors l'équation du symétrique de l'Hugoniot. Cette remarque est très importante car elle permet d'approximer l'isentrope de détente par son Hugoniot symétrique. Cela est particulièrement intéressant car il existe souvent beaucoup de données sur l'Hugoniot et très peu sur l'isentrope.

CQFR : Au contraire de l'onde de choc, une onde de relaxation (ou raréfaction ou détente) apporte une diminution de pression et de densité. Elle est caractérisé par l'équation : $u = u_0 + \int_p^{p_0} \sqrt{-\left(\frac{dv}{dp}\right)_S} dp$ et peut être, au premier ordre, approximée par l'Hugoniot symétrique.

1.10 Cas d'une onde de choc dans un solide

Nous n'avons pour le moment considéré que des milieux liquides ou gazeux. L'augmentation en densité du matériau est le résultat d'une compression isentrope et les ondes sonores se propagent à une vitesse c définie comme :

$$c_0 = \sqrt{-V^2 \left(\frac{\partial P}{\partial V}\right)_S} = \sqrt{\frac{V}{k}} \tag{1.88}$$

où k=$-\frac{1}{V}\left(\frac{\partial V}{\partial P}\right)_S$. Le solide peut être traité de manière identique si les pressions appliquées sont suffisamment fortes pour que les effets liés aux contraintes internes deviennent négligeables. Lorsque les pressions deviennent trop faibles, il devient nécessaire de prendre en compte les propriétés élastiques et inélastiques du milieu. La pression P_H donnée par les relations d'Hugoniot est différente de la pression thermodynamique du matériau. Un solide ne flue comme un liquide que au delà de la limite élastique. La discontinuité de pression donnée par les relations de Rankine Hugoniot correspond à la pression hydrostatique du milieu, plus la pression nécessaire pour faire fluer le matériau, la limite élastique. Deux corrections sont à prendre en compte.

1.10.1 L'onde élastique

Lorsqu'on applique une force extérieure à un milieu, celui-ci va acquérir une énergie élastique. Si ce milieu est élastique, cette énergie est directement liée au changement de volume et à la déformation. Le milieu est alors dans un état hors équilibre et si les forces extérieures redeviennent nulles, il reviendra à son état initial d'équilibre. Par contre si les forces extérieures sont suffisamment grandes, le solide va perdre son élasticité et les atomes vont se réarranger entre eux pour atteindre un nouvel état d'équilibre différent de l'état initial. Ce nouvel état d'équilibre sera alors conservé même si les forces extérieures deviennent nulles. Le comportement du solide est devenu plastique et toute transformation sera irréversible. Ce passage d'un comportement élastique à un comportement plastique est caractérisé par une pression uniaxiale critique P_{cr}.

Imaginons un solide auquel on applique une pression P. Cette pression entraîne la formation d'une onde de compression unique se propageant à la vitesse c_l définit par [6] :

$$c_l^2 = \sqrt{\frac{K + \frac{4}{3}G}{\rho}} \tag{1.89}$$

où K et G sont les modules de compression et de rigidité et ρ la densité. Si la pression uniaxiale (ou déviateur des contraintes) dépasse la valeur critique $\frac{P_{cr}}{\rho c_l^2} = \frac{\Delta V_{cr}}{V}$, le comportement devient plastique. On a alors formation d'une seconde onde se propageant à la vitesse c_0 définie plus haut. La figure 1.5 illustre les deux possibilités. Les vitesses matérielles sont égales à $u_{cr} = P_{cr}/\rho c_l$ et $u' = (P - P_{cr})/\rho c_0$. En général c_0 est inférieure à c_l et on a un système stable où les deux ondes acoustiques se propagent sans se rattraper. Cependant pour des ondes de choc très fortes, la vitesse du choc est très souvent supérieure

à c_0. Ainsi lorsque U_s>c_l, il n'y a pas de séparation d'ondes. Une seule onde apparaît et se propage à la vitesse U_s.

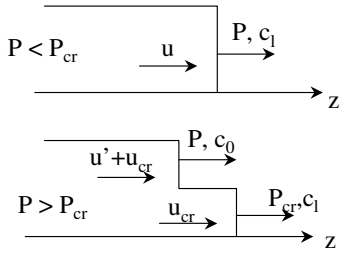


FIG. 1.5 – Propagation d'une onde dans un solide : Si la pression appliquée est inférieure à la pression critique, une seule onde se propage à la vitesse c_l (figure du haut). Si la pression est supérieure, on a formation de deux ondes. Une première onde se propage à la vitesse c_l et à la pression P_{cr}. C'est l'onde élastique. Elle est suivie d'une onde plastique se propageant à la vitesse c_0 (figure du bas).

Si l'on souhaite comparer ensuite un état final solide à des états correspondants au domaine fluide, il faut donc, lorsque les pressions appliquées au solide sont faibles, prendre en compte la correction due à la présence de cette onde élastique. Cela revient ainsi à ramener la pression dans le solide à une pression hydrostatique.

1.10.2 Correction de résistance

Dans le cas du solide, une autre correction doit être prise en compte [7]. La résistance d'un matériau sous choc, au dessus de la limite élastique, a tendance à augmenter. Le matériau se "durcit". Cela est du à la rapidité de la compression qui entraîne ainsi une grande densité de défauts durcissant le matériau par rapport aux conditions ambiantes. Ce phénomène est ralenti par l'augmentation de température dû au choc qui, au contraire, a tendance à éliminer les défauts. On va donc observer une augmentation de la rigidité du matériau, puis une diminution jusqu'à devenir nulle lors du passage à l'état liquide. Cette correction est égale à 2/3Y où Y est la limite élastique (contraintes de fluage). La figure présente la correction à appliquer en fonction de la pression de long de l'Hugoniot pour différents systèmes [7]. Cette correction est ainsi la correction à donner à la pression donnée par les relations de Rankine-Hugoniot pour avoir la pression hydrostatique du choc.

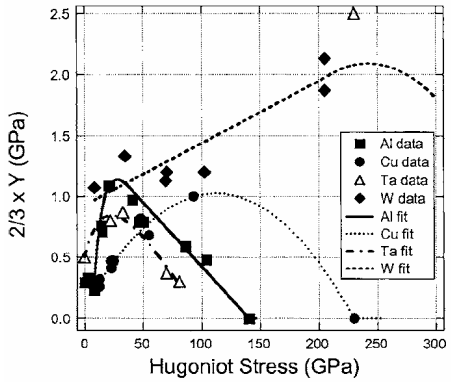


FIG. 1.6 – Courbes de correction de résistance pour différents matériaux [7]

CQFR : Deux corrections doivent être prises en compte pour pouvoir comparer les pressions hydrostatiques solide et liquide. La première correction est liée aux propriétés élastique/plastique des solides. Une onde élastique précède l'onde principale plastique. Il faut donc en tenir compte dans le calcul de l'état final. La seconde correction est liée à la formation de l'onde de choc qui demande un fluage du matériau au delà de sa limite élastique. La pression hydrostatique est la pression des équations de Rankine-Hugoniot moins 2/3Y où Y est la contrainte de fluage.

Chapitre 2

Quelques modèles pour décrire la matière dense

Sommaire

2.1 Gaz parfait moléculaire **25**
2.1.1 Forme d'énergie libre en fonction de $\gamma = \frac{c_p}{c_v}$ 26
2.1.2 Comportement de l'Hugoniot d'un gaz parfait 28
2.2 Interaction entre atomes **29**
2.2.1 Approche chimique avec potentiels 30
2.2.2 Modèle de Grüneisen 31
2.3 Contribution électronique **34**
2.3.1 Gaz d'électrons sans interaction 34
2.3.2 Modèle de Thomas-Fermi 39
2.3.3 Théorie de la fonctionnelle de la densité 42
2.4 Ionisation et conductivité **44**
2.4.1 Equation de Saha 44
2.4.2 Ionisation en pression 45
2.4.3 Modèle de bandes : fermeture du gap 46
2.4.4 Modèle de Drude 48
2.4.5 Relation entre réflectivité et conductivité 50

Après avoir vu les grandes lignes de la physique des chocs, nous allons nous intéresser dans ce chapitre à différents modèles génériques décrivant la matière et en particulier comment chacun de ces modèles se comportent sous choc. Ces modèles, souvent simples, permettent de décrire des comportements limites communs à tous les systèmes. Ils sont ainsi une première approche pour l'interprétation des résultats.

2.1 Gaz parfait moléculaire

Même si dans les conditions de la "warm dense matter", le gaz parfait (gaz de particules sans interaction) n'est pas adapté pour représenter la matière, il est une première approche des équations d'état. Il représente un comportement limite vers lequel tout système à hautes températures va tendre. Il est donc important d'en présenter les principales caractéristiques qui nous seront utiles par la suite.

2.1.1 Forme d'énergie libre en fonction de $\gamma = \frac{c_p}{c_v}$

Si on considère un gaz idéal de particules sans interaction, on peut montrer à partir de la statistique de Boltzman que l'équation d'un tel système est l'équation bien connue :

$$PV = NkT \tag{2.1}$$

et

$$E = \frac{NkT}{\gamma - 1} \tag{2.2}$$

avec $\gamma = \frac{C_p}{C_v}$. Les valeurs de γ dépendent de l'énergie du système : énergie de translation, vibration, rotation et excitation électronique.

Si un terme général de position ou de moment apparaît au carré dans l'expression de l'énergie totale, il va contribuer pour $1/2kT$ à l'énergie totale du système (loi d'équipartition de l'énergie). Ainsi si l'on considère un système d'atomes où seules les translations sont possibles, l'énergie sera pour une molécule :

$$\varepsilon = \frac{1}{2m}(p_x^2 + p_y^2 + p_z^2) \tag{2.3}$$

donc pour un gaz de N molécules :

$$E = \left(\frac{1}{2} + \frac{1}{2} + \frac{1}{2}\right) NkT = \frac{3}{2}NkT \tag{2.4}$$

pour les contributions en p_x, p_y et p_z. On a alors $\gamma = \frac{5}{3}$. Si on considère un gaz de molécules diatomiques comme H_2, en négligeant les vibrations, mais en prenant en compte les rotations, on ajoute deux degrés de liberté en plus donc :

$$E = \frac{5}{2}NkT \tag{2.5}$$

et

$$\gamma = \frac{7}{5} \tag{2.6}$$

Enfin si on prend tous les degrés de liberté en compte, on a :

$$E = \frac{7}{2}NkT \tag{2.7}$$

et

$$\gamma = \frac{9}{7} \tag{2.8}$$

Cette approche permet de décrire de façon simple le comportement d'un gaz de molécules. Cependant, la variation du coefficient γ et donc des coefficients C_p et C_v n'est pas discontinue comme pourrait le laisser penser le précédent raisonnement. Le passage d'un palier à l'autre se fait de manière continue et il faut alors faire appel à la mécanique quantique pour expliquer ce comportement.

Formulation à partir de la fonction de partition L'énergie d'un gaz peut être aussi exprimée par une autre formulation utilisant la fonction de partition des particules. La fonction de partition Q d'un gaz de N particules sans interaction se met sous la forme :

$$Q = \frac{1}{N!}q^N \tag{2.9}$$

où q est la fonction de partition d'une particule :

$$q = \sum_n e^{-\varepsilon_n/kT} \tag{2.10}$$

La somme porte sur tous les états de la molécule. L'énergie E et l'énergie libre F s'expriment alors comme :

$$E = kT^2 \left(\frac{\partial lnQ}{\partial T}\right)_V \tag{2.11}$$

$$F = -kTlnQ \tag{2.12}$$

Si on considère que tous ces états sont indépendants les uns des autres, q prend la forme simple :

$$q = q_t q_v q_r q_e ... \tag{2.13}$$

où

$$q_{t,v,r,e} = \sum_n e^{-\varepsilon_{t,v,r,en}/kT} \tag{2.14}$$

est la somme sur les différents états des énergies de translation, vibration, rotation et niveaux électroniques. On ne va considérer ici que l'énergie de translation et l'énergie des niveaux internes de la molécule. q_t est déterminée à partir de l'équation de Schrödinger (différents états atteints par une particule piégé dans une boîte). Cela donne :

$$q_t = \left[\frac{mkT}{2\pi\hbar^2}\right]^{3/2} V \tag{2.15}$$

On a finalement :

$$Q = \frac{1}{N!}\left\{\left(\frac{mkT}{2\pi\hbar^2}\right)^{3/2} V \sum_n e^{\left(-\frac{\varepsilon'_n}{kT}\right)}\right\}^N \tag{2.16}$$

ε'_n correspond à l'énergie du niveau interne n et la somme est effectuée sur tous les niveaux possibles. Après plusieurs transformations, on trouve alors [1] :

$$F = -NkTln\left[\frac{eV}{N}\right] + Nf(T) \tag{2.17}$$

avec

$$f(T) = -kTln\left\{\left(\frac{mkT}{2\pi\hbar^2}\right)^{3/2} \sum_n e^{\left(-\frac{\varepsilon'_n}{kT}\right)}\right\} \tag{2.18}$$

On peut montrer de la même manière par transformations successives que :

$$G = \mu N = N(kTlnP + \chi(T)) \tag{2.19}$$

avec $\chi(T) = f(T) - kTln(kT)$. Si le système est constitué d'espèces différentes, on a $F = \Sigma_i F_i$ et $G = \sum_i G_i$, soit :

$$G = \sum_i (N_i kTlnP_i + N_i \chi_i(T)) \tag{2.20}$$

C'est cette notation qui sera utilisée par la suite pour décrire le phénomène d'ionisation.

2.1.2 Comportement de l'Hugoniot d'un gaz parfait

Considérons donc un gaz parfait dont l'équation est $E = \frac{PV}{\gamma-1}$. Si on remplace cette expression dans 1.46, on obtient :

$$\frac{P}{P_0} = \frac{(\gamma+1)V_0 - (\gamma-1)V}{(\gamma+1)V - (\gamma-1)V_0} \tag{2.21}$$

On peut alors voir que pour un choc fort où la pression tend vers l'infini, le ratio des volumes et donc des densités tend vers une constante.

$$\left(\frac{V_0}{V}\right)_{min} = \left(\frac{\rho}{\rho_0}\right)_{max} = \frac{\gamma+1}{\gamma-1} = K \tag{2.22}$$

Même pour des chocs très forts, la compression ne pourra pas dépasser une certaine valeur limite. Pour un gaz monoatomique, on a $\gamma = 5/3$ donc $\left(\frac{\rho}{\rho_0}\right)_{max} = 4$. Pour un gaz diatomique sans les modes de vibration, on a $\gamma = 7/5$ donc $\left(\frac{\rho}{\rho_0}\right)_{max} = 6$. Et enfin dans certains cas si le gaz est extrêmement dense, les modes de vibrations peuvent être excités avant que la dissociation ne commence et on a alors $\gamma = 9/7$ donc $\left(\frac{\rho}{\rho_0}\right)_{max} = 8$.

La dissociation et l'ionisation peuvent conduire à des valeurs limites encore plus grandes. En effet l'énergie interne peut se mettre sous la forme de deux termes [6] : un terme regroupant les énergies de translation E_{trans} et un terme regroupant les énergies liées aux degrés de liberté du système et l'énergie potentielle , soit $E = E_{trans} + Q$. La pression peut être exprimée en fonction de l'énergie de translation soit :

$$PV = NkT = 2/3E_{trans} \tag{2.23}$$

A partir de l'expression de l'énergie le long de l'Hugoniot (équation 1.46 : $E - E_0 = \frac{1}{2}(P+P_0)(\frac{1}{\rho_0} - \frac{1}{\rho})$ et en remplaçant P par son expression en fonction de l'énergie de translation, on a alors, en négligeant la pression et l'énergie initiale, pour un choc fort :

$$E_{trans} + Q = \frac{1}{2}\frac{2}{3}E_{trans}\rho(\frac{1}{\rho_0} - \frac{1}{\rho}) \tag{2.24}$$

Ce qui donne finalement :

$$K = \frac{\rho}{\rho_0} = 4 + \frac{3Q}{E_{trans}} \tag{2.25}$$

Ainsi si l'énergie potentielle et les énergies des degrés de liberté sont grandes par rapport à l'énergie de translation, la limite va s'éloigner de la valeur 4, limite du gaz monoatomique. C'est effectivement souvent le cas et il n'est pas rare que le rapport des densités puisse aller jusqu'à 10. Après avoir atteint un maximum, la contribution de l'énergie potentielle va diminuer. En effet le nombre de particules augmente à cause de la dissociation et de l'ionisation entraînant une augmentation de l'énergie de translation. On retrouve alors lorsque l'ionisation est complète la limite de 4 du gaz parfait. L'évolution de la pression en fonction du facteur de compression est illustrée figure 2.1. Pour des gaz lourds, on peut observer des sauts plus ou moins larges dus aux différences d'ionization entre les différentes couches. Ainsi lorsque les électrons externes sont déjà partis, et que les électrons internes commencent à être ionisés, l'énergie potentielle augmente fortement et le rapport entre les densités passe alors par un second maximum. Mais à nouveau, lorsque les molécules sont complètement dissociées et ionisées, l'énergie de translation continue à augmenter avec la température dépassant l'énergie potentielle et on tend à nouveau vers la limite 4. Pour l'hydrogène, dans la région de dissociation et ionisation complète (énergies de 2.24 eV et 13.5 eV respectivement), l'énergie de translation est égal à 3kT ce qui donne :

$$K = 4 + \frac{15.74}{T(eV)} \tag{2.26}$$

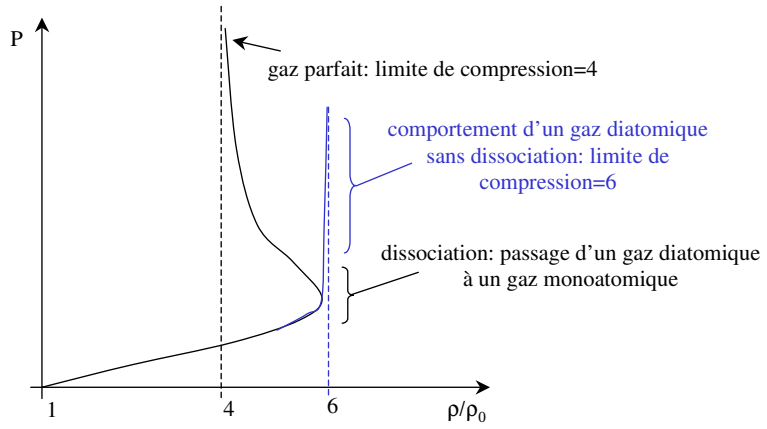


FIG. 2.1 – Evolution de la pression en fonction du facteur de compression le long de l'Hugoniot

qui tend vers 4 quand T tend vers l'infini. Dans le formalisme du gaz parfait, soit avec γ, soit en prenant en compte l'énergie des niveaux internes, on voit que la compression peut aller jusqu'à 8 (tableau 2.1 récapitulatif).

système	limite de compression
monoatomique	4
diatomique sans vibration	6
diatomique avec vibration	8
avec énergies internes	4 + 3Q/E

TAB. 2.1 – Limites de compression le long de l'hugoniot

CQFR : La limite de compression d'un gaz parfait moléculaire est $\frac{\rho}{\rho_0} = \frac{\gamma+1}{\gamma-1}$. On peut observer des passages par des maximums secondaires selon la nature du gaz (atomique, diatomique,...) et les degrés de libertés des molécules. Cependant à très hautes pressions et températures, le comportement du gaz se rapproche de celui d'un gaz parfait monoatomique et a une compression limite de 4.

Tout ce que nous avons établi pour le moment n'est valable que pour un gaz de particules sans interaction. Ce comportement correspond donc à un comportement limite. Pour décrire un système de manière plus précise les interactions ne peuvent pas être négligées.

2.2 Interaction entre atomes

Comme nous l'avons vu, une équation d'état est une relation qui relie plusieurs grandeurs thermodynamiques, f(P,V,T,N)=0 par exemple. Cela revient à déterminer la fonction de partition Z ou encore de façon équivalente l'énergie libre F du système. Deux grandes familles de modèles existent : l'approche physique et l'approche chimique. Dans l'approche physique, seules les particules élémentaires, électrons et noyaux, sont considérées et interagissent entre eux par effet Coulombien. Il suffit alors de résoudre l'équation de Schrödinger pour le système obtenant alors un spectre d'états liés qui va former les atomes et les molécules. C'est cette idée qui est à la base de la dynamique moléculaire et des méthodes ab-initio : résoudre l'Hamiltonien pour un système de particules élémentaires. Cette méthode

bien que très intuitive est loin d'être simple à mettre en oeuvre. Dans l'approche chimique, les particules fondamentales ne sont plus les noyaux et les électrons, mais les espèces chimiques du milieu, atomes, ions et électrons. Ces espèces interagissent alors entre elles et, en exprimant l'énergie libre totale des espèces avec leurs interactions, on peut remonter à la configuration du système. Cette approche reste plus simple que l'approche physique dans la mesure où les potentiels d'interaction restent eux aussi simples. Elle a cependant certaines limites dues au fait que à fortes densités, les électrons se délocalisent et les potentiels d'interaction doivent être modifiés. Les espèces chimiques perdent alors leur identité.

2.2.1 Approche chimique avec potentiels

Les deux modèles chimiques qui nous intéressent particulièrement sont le modèle de Ross pour l'hydrogène et le modèle de Saumon et Chabrier pour l'hélium. Nous les verrons plus en détails dans les chapitres suivants. Nous allons essayer de décrire dans ce paragraphe l'approche générale commune à chaque modèle chimique.

L'approche chimique est basée sur la minimisation de l'énergie libre du système [8, 9, 10]. On définit un modèle pour l'énergie libre F(V,T,N$_i$) pour un volume V, une température T et un nombre de particules N$_i$ pour chaque espèce i. L'état d'équilibre thermodynamique est ensuite trouvé en minimisant F à T et V constant en respectant les contraintes stoechiométriques imposées par les réactions chimiques ayant lieu :

$$\sum \left(\frac{\partial F}{\partial N_i}\right)_{V,T} \nu_{ij} = 0 \tag{2.27}$$

pour tout j, ν_{ij} étant les coefficients stoechiométriques des réactions. Les autres grandeurs thermodynamiques sont alors déduites de F :

$$P = -\frac{\partial F}{\partial V}\bigg|_{T,N_i}, S = -\frac{\partial F}{\partial T}\bigg|_{T,N_i} \tag{2.28}$$

Il est souvent choisi d'écrire F sous la forme d'une somme de 3 termes (voir [9] pour les conditions de cette approximation) correspondant chacun à des contributions cinétiques F$_{cin}$, des contributions liés aux degrés de liberté électroniques F$_{int}$et enfin à des contributions rendant compte des interactions entre atomes liés à leur configuration F$_{conf}$.

$$F = F_{cin} + F_{int} + F_{conf} \tag{2.29}$$

Des termes correctifs peuvent être ajoutés pour tenir par exemple compte du comportement quantique des atomes [11]. La difficulté réside dans la description des termes d'énergie interne et d'énergie d'interactions.

Le terme cinétique F$_{cin}$ est une combinaison de l'énergie cinétique pure de chaque système. On peut le calculer grâce à la statistique de Maxwell-Boltzmann ou Fermi [12] selon les espèces.

Le terme F$_{conf}$ apparaît à cause des interactions interparticulaires et de leur configuration les unes par rapport aux autres. Il dépend ainsi de la fonction de distribution particulaire et en particulier la fonction de distribution radiale g(r) qui est reliée à la densité des particules. Bien que plusieurs méthodes existent nous ne présenterons ici que la méthode de théorie pertubative des fluides car c'est celle employée par Saumon Chabrier [12] pour l'équation d'état de l'hélium. L'énergie potentielle des N particules est divisée en un terme U$_0^N$ de référence correspondant à l'interaction de référence, souvent de type sphères dures, permettant de calculer la fonction de distribution de paires et en un terme correctif U$_1^N$ provenant des interactions longues distances et représentant l'écart par rapport au potentiel de référence. On peut alors montrer que :

$$F_{conf} \simeq F_0 + \langle U_1^N \rangle_0 \tag{2.30}$$

où

$$\langle U_1^N \rangle_0 = \int d\mathbf{r}^N \rho_0(\mathbf{r}_1, ..., \mathbf{r}_N) \sum_{i>j}^{N} \Phi(|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|) = \frac{N(N-1)}{2V} \int_\sigma^\infty d\mathbf{r} g(r) \Phi(r) \tag{2.31}$$

Tout réside alors dans le choix des potentiels Φ décrivant les interactions interparticulaires. Dans l'hypothèse de sphères dures, le potentiel prend la forme :

$$\Phi(r) = \{^{+\infty, r<2\sigma}_{0, r>2\sigma} \tag{2.32}$$

où σ est le rayon de la sphère dure. Dans le cas de sphères molles :

$$\Phi(r) = \varepsilon \left(\frac{r^*}{r} \right)^n \tag{2.33}$$

ε et r* servant à la normalisation du potentiel.

Le terme F$_{int}$,représentant l'énergie interne, peut être lui aussi exprimé de plusieurs façons. Saumon et Chabrier [12] pour l'hélium négligent l'existence d'états excités et ne prennent en compte que les potentiels de première et seconde ionization. Hummer et Mihalas [10] introduisent de façon plus générale dans leur formalisme l'existence d'états excités en leur attribuant à chacun une probabilité d'occupation, w$_{ijk}$, elle même déterminée par l'interaction des particules entre elles. Le nombre d'occupation de l'état i de l'ion j de l'espèce k est exprimé sous la forme :

$$N_{ijk}/N_{jk} = w_{ijk} e^{-\epsilon_{ijk}/kT} / \tilde{Z}_{jk} \tag{2.34}$$

avec

$$\tilde{Z}_{jk} \equiv \sum_i w_{ijk} e^{-\epsilon_{ijk}/kT} \tag{2.35}$$

On peut alors écrire l'énergie libre sous la forme :

$$F = F_{id} - kTln\tilde{Z} + f - \sum_i n_i \frac{\partial f}{\partial n_i} \tag{2.36}$$

f représente le terme non idéal et ne depend que des n$_i$. La solution exacte nécessite en principe la connaissance parfaite de toutes les interactions interparticulaires. Des approximations sont en général nécessaires, mais ce formalisme permet de les combiner facilement.

CQFR : Dans l'approche chimique, les particules fondamentales considérées sont les espèces chimiques du milieu, atomes, ions et électrons. Ces espèces interagissent alors entre elles et en exprimant l'énergie libre totale des espèces avec leurs interactions, on peut remonter à la configuration du système. Cette approche est simple dans la mesure où les potentiels d'interaction utilisés sont eux aussi simples. A haute densité, quand les électrons commencent à se délocaliser les interactions entre espèces ionisées doivent être prises en compte. Le problème de la jonction entre les différents domaines est le point faible de cette approche.

2.2.2 Modèle de Grüneisen

L'équation de Grüneisen a été développé en 1926 et représente la contribution thermique des atomes à l'énergie totale. Elle établit que l'on peut relier la pression d'un ensemble d'atomes avec leur énergie par la relation suivante :

$$P_{Ta} = \frac{\gamma_G}{V} E_{Ta} \tag{2.37}$$

où γ_G, le coefficient de Grüneisen, est supposé ne dépendre que de V. Nous allons essayer de comprendre ce que représente ce coefficient et de trouver son expression en considérant un solide.

On considère un solide de N atomes pouvant osciller suivant 3N modes de vibrations indépendants. La fonction de partition du système peut s'écrire :

$$Q = \Sigma_i e^{-\frac{E_i}{kT}} = \sum_{n_1=0}^{\infty} ... \sum_{n_{3N}=0}^{\infty} e^{-\frac{E_i}{kT}} \tag{2.38}$$

avec

$$E_i \equiv E_{n_1 n_2 ... n_{3N}} = \sum_{j=1}^{3N} (n_j + 1/2) h\nu_j + E_0 \tag{2.39}$$

$(n_j + 1/2)h\nu_j$ représente l'énergie du mode de vibration j à la fréquence ν_j. Après simplification, on trouve :

$$Q = e^{-E_c/kT} \prod_{j=1}^{3N} \left(1 - e^{-h\nu_j/kT}\right)^{-1} \tag{2.40}$$

En utilisant alors, la définition de l'énergie de Helmholtz, $F = -\frac{1}{kT} lnQ$ et les relations liant P, E et F, on obtient :

$$E = F - T\left(\frac{\partial F}{\partial T}\right)_V = E_c + \sum_{j=1}^{3N} \frac{h\nu_j}{e^{h\nu_j/kT} - 1} \tag{2.41}$$

$$P = -\left(\frac{\partial F}{\partial V}\right)_T = -\frac{dE_c}{dV} + \frac{1}{V} \sum_{j=1}^{3N} \frac{\gamma_j h\nu_j}{e^{h\nu_j/kT} - 1} \tag{2.42}$$

avec $\gamma_j = -\frac{V}{\nu_j}(\frac{\partial \nu_j}{\partial V})_T = -(\frac{\partial ln\nu_j}{\partial lnV})_T$. La dépendence des fréquences avec le volume s'explique par le fait que comprimer un solide le rend plus dur, augmentant les forces intérieures et ainsi les fréquences de vibrations. Arrivé à ce point, il manque encore des hypothèses pour obtenir directement la relation 2.55.

La première hypothèse formulée par Einstein en 1907 fut de considérer que toutes les fréquences étaient égales $\nu_j = \nu$. Les résultats étaient qualitativement en accord avec les expériences, mais des écarts quantitatifs étaient observés. Cette théorie fut améliorée par Debye ensuite qui, au lieu de considérer une simple fréquence, considéra un spectre de fréquences. Le solide est assimilé à un milieu continu et le nombre d'ondes stationnaires est calculé. Pour des ondes contenues dans un volume V avec des fréquences comprises entre ν et $\nu + d\nu$, on a :

$$g(\nu)d\nu = 4\pi\nu^2 d\nu V \left(\frac{1}{u_l^3} + \frac{2}{u_t^3}\right) \tag{2.43}$$

où u_l et u_t sont respectivement les vitesses longitudinales et transverses. La fréquence maximale est déterminée par le fait qu'il ne peut pas y avoir plus de 3N modes. Donc :

$$3N = 4\pi V \left(\frac{1}{u_l^3} + \frac{2}{u_t^3}\right) \int_0^{\nu_D} \nu^2 d\nu \tag{2.44}$$

Après plusieurs manipulations, on trouve alors l'énergie de Debye :

$$E_D = \int_0^{\nu_D} h\nu g(\nu) d\nu = Tf\left(\frac{T_D}{T}\right) \tag{2.45}$$

où $kT_D = h\nu_D$. En utilisant alors à nouveau l'énergie de Helmholtz, on obtient finalement :

$$P = P_c + \frac{\gamma E_D}{V} \tag{2.46}$$

avec

$$\gamma_G = -\frac{V}{T_D}\frac{dT_D}{dV} \tag{2.47}$$

Si on dérive 2.46 par rapport à T, on a :

$$\left(\frac{\partial P}{\partial T}\right)_V = \frac{\gamma_G c_v}{V} \tag{2.48}$$

ce qui donne en utilisant les identités thermodynamiques :

$$\gamma_G = \frac{3\alpha V}{kc_v} \tag{2.49}$$

où $\alpha = \frac{k}{3}\left(\frac{\partial V}{\partial T}\right)_P$ et $k = -\frac{1}{V}\left(\frac{\partial V}{\partial P}\right)_T$.

Plusieurs autres dérivations ont été faites par la suite, une des plus connues étant celle de Slater-Landau qui considère que γ peut s'écrire :

$$\gamma_G = -\frac{dln\nu_D}{dlnV} \tag{2.50}$$

Il obtient alors une nouvelle expression :

$$\gamma_G = -\frac{2}{3} - \frac{1}{2}V\left(\frac{\partial^2 P}{\partial V^2}\right)_T / \left(\frac{\partial P}{\partial V}\right)_T \tag{2.51}$$

D'autres modèles ont suivi et une expression plus générale est apparue :

$$\gamma_G = -\left(\frac{2}{3} - \frac{t}{2}\right) - \frac{V}{2}\frac{d^2}{dV^2}\left(P_c V^{2t/3}\right) / \frac{d}{dV}\left(P_c V^{2t/3}\right) \tag{2.52}$$

$t = 0, 1, 2$ sont les valeurs les plus utilisées. $t = 1$ correspond à la formule de Dugdale-McDonald.

Il a été ensuite montré expérimentalement que $\frac{\gamma_0}{V_0} = \frac{\gamma_G}{V}$ était un bonne approximation. Cette dernière expression peut être améliorée pour prendre en compte la valeur limite atteinte par γ aux hautes compressions. On obtient alors :

$$\gamma = \frac{\gamma_0 V}{V_0} + \frac{2}{3}\left(1 - \frac{V}{V_0}\right) \tag{2.53}$$

La valeur limite de γ est donc de 2/3. Cette limite est valable pour un solide, mais aussi pour un gaz parfait ou un gaz d'électrons.

Mesures expérimentales de γ_G Il existe deux méthodes de mesure de γ_G. La méthode la plus directe est de faire varier la pression d'un système à volume constant et de mesurer son énergie. Cela est par exemple possible le long de l'Hugoniot lorsque la compression maximale de 4 a été atteinte. Le volume est alors constant et on peut appliquer directement la formule :

$$\gamma_G = \frac{P_2 - P_1}{E_2 - E_1}V \tag{2.54}$$

P_1, E_1, P_2, et E_2 étant mesurées pour des intensités de choc différentes, mais sur le même système. Il n'existe cependant souvent pas assez de données dans la limite de compression. γ_G est mesuré à partir de deux Hugoniots différents : le même système, mais dont l'Hugoniot a été mesuré à partir de densités initiales différentes. On a donc ainsi accès au même composé mais dans des états différents. Il suffit alors de tracer l'Hugoniot de chaque système et de choisir P_1, E_1, P_2, et E_2 pour un même volume. La

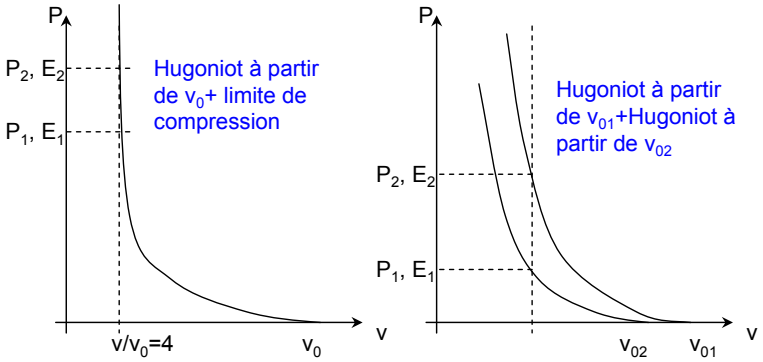


FIG. 2.2 – Mesure du coefficient γ_G : $\gamma_G = \frac{P_2-P_1}{E_2-E_1}V$

figure 2.2 présente une illustration de ces deux méthodes. C'est à partir de deux Hugoniots différentes que le coefficient γ_G a été mesuré pour le quartz par Trunin [13, 14, 15]et Luo [16, 17].

CQFR : Le modèle de Grüneisen représente la contribution thermique des atomes à l'ensemble du système. Elle établit que l'on peut relier la pression avec leur énergie par la relation suivante :

$$P_{Ta} = \frac{\gamma_G}{V} E_{Ta} \tag{2.55}$$

où γ_G, le coefficient de Grüneisen, est supposé ne dépendre que de V. Plusieurs expressions théoriques et expérimentales existent pour décrire ce coefficient. $\gamma_G = cst$ et $\gamma_G \propto V$ sont les deux expressions les plus utilisées.

2.3 Contribution électronique

Nous avons vu avec des modèles simples comment décrire un gaz de molécules et son comportement le long de l'Hugoniot. Dans ces modèles, les électrons ont été plus ou moins mis de côté dans le sens où leur contribution était réduite au niveau d'énergie fondamentale, les niveaux excités étant négligés. Cependant dans des plasmas très chauds, ce sont les électrons les plus énergétiques et ce sont donc eux qui déterminent en grand partie le comportement du système.

2.3.1 Gaz d'électrons sans interaction

2.3.1.1 Modèle de Fermi-Dirac

En physique statistique classique, on considère que les particules identiques sont toutes différentiables. Cela équivaudrait à pouvoir les numéroter pour les reconnaître. L'équation des gaz parfait a été établie grâce à cela. En physique quantique, les particules identiques ne sont pas considérées comme différentiables ce qui entraîne des différences fondamentales dans le calcul des fonctions thermodynamiques.

Il existe deux grandes familles de distributions possibles. La première est la statistique de Bose Einstein dans laquelle on considère que un état peut être occupé par plusieurs particules. La deuxième est la statistique de Fermi Dirac dans laquelle un état ne peut être occupé par plus de une particule. Des particules vérifiant la statistique de Bose Einstein sont appelés des "bosons" et on peut citer comme exemple

de particules vérifiant ces relations les photons. Des particules vérifiant la statistique de Fermi Dirac sont des "fermions" et parmi elles, on peut compter les électrons, les protons ou encore les neutrons.

La probabilité qu'un système contenant N particules ait une énergie total $E_i = n_{1i}\varepsilon_1 + n_{2i}\varepsilon_2 + ...$ est donnée par [1] :

$$\wp_i(N,V,T) = \frac{e^{N\mu/kT}e^{-E_i/kT}}{Z} \tag{2.56}$$

où μ est le potentiel chimique ; n_{1i}, n_{2i},... représente respectivement le nombre de particules dans les états ε_1, ε_2,...lorsque l'énergie totale est E_i et Z, défini comme

$$Z = \sum_N e^{\mu N/kT} \sum_i e^{-E_i/kT} \tag{2.57}$$

Dans un gaz de Fermi Dirac, il n'y a au maximum que 1 particule dans un état donné. Donc n ne peut prendre que la valeur 1 ou 0. Z prend alors la forme :

$$Z = \left(1 + e^{(\mu-\varepsilon_1)/kT}\right)\left(1 + e^{(\mu-\varepsilon_2)/kT}\right)... \tag{2.58}$$

Le nombre moyen de particules sur le niveau j est donné par :

$$< n_j >= \sum_N \sum_i n_{ij}\wp_i(N,V,T) \tag{2.59}$$

ce qui donne :

$$< n_j >= -kT\left(\frac{\partial lnZ}{\partial \varepsilon_j}\right)_{\mu,T,} \tag{2.60}$$

soit :

$$< n_j >= \frac{1}{e^{(\varepsilon_j-\mu)/kT} + 1} \tag{2.61}$$

que l'on appelle la distribution de Fermi Dirac. On peut alors déterminer N et E.

$$N = \Sigma_j < n_j > \tag{2.62}$$

et

$$E = \Sigma_j < n_j > \varepsilon_j \tag{2.63}$$

Si on considère que la distribution des états d'énergie est presque continue, on peut remplacer les sommes par des intégrales

$$\sum_j ... = \int_0^\infty ...g(\varepsilon)d\varepsilon \tag{2.64}$$

où g(ε) est la densité des états en fonction de l'énergie et est donnée par (cf annexe 3) :

$$g(\varepsilon) = G\frac{(2m)^{3/2}V}{4\pi^2\hbar^3}\varepsilon^{1/2} \tag{2.65}$$

On obtient alors dans un cas non relativiste [1] :

$$N \approx G\frac{(2m)^{3/2}V}{4\pi^2\hbar^3}\int_0^\infty \frac{\varepsilon^{1/2}d\varepsilon}{e^{(\varepsilon-\mu)/kT} + 1} \tag{2.66}$$

où G est le paramètre de dégénérescence et est égal à 2 pour les électrons. Si $e^{-\mu/kT} >> 1$ (limite classique), on trouve :

$$e^{-\mu/kT} \approx \frac{GV}{N}(\frac{mkT}{2\pi\hbar^2})^{3/2} \tag{2.67}$$

Cela nous permet de déterminer la condition pour la physique classique :

$$T >> \frac{2\pi\hbar^2}{mk}\left(\frac{N}{GV}\right)^{2/3} \tag{2.68}$$

Pour un gaz d'électrons dans un métal, $G = 2$ et on peut considérer que $N/V = 10^{22}cm^{-3}$, donc :

$$T >> 20000K \tag{2.69}$$

Donc à température ambiante, un gaz d'électrons n'est absolument pas classique. Ce sont les effets quantiques qui dominent.

La distribution de Fermi Dirac est plus connue sous la forme :

$$F(\varepsilon) = \frac{1}{e^{(\varepsilon-\varepsilon_F)/kT}+1} \tag{2.70}$$

où $\mu = \varepsilon_F$ est appelé l'énergie de Fermi. $F(\varepsilon)$ représente l'occupation moyenne du niveau d'énergie ε et est représentée sur la figure 2.3.

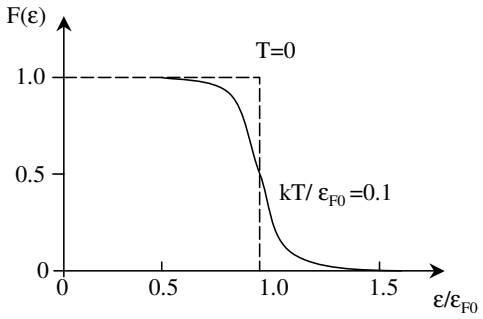


FIG. 2.3 – Distribution de Fermi-Dirac : ε_{F0} correspond au niveau de Fermi à T=0

A $T = 0$, tous les états en dessous du niveau de Fermi sont occupés et tous les niveaux au dessus sont vides. N devient alors :

$$N \approx G\frac{(2m)^{3/2}V}{4\pi^2\hbar^3}\int_0^{\varepsilon_{F_0}} \varepsilon^{1/2}d\varepsilon \tag{2.71}$$

On obtient alors une expression pour ε_{F_0} :

$$\varepsilon_{F_0} = \varepsilon_F(T=0) = \left(\frac{6\pi^2}{G}\right)^{2/3}\frac{\hbar^2}{2m}n^{2/3} \tag{2.72}$$

Sachant que $\varepsilon = \frac{\hbar^2k^2}{2m}$, on a alors :

$$k_F^2 = \frac{2m\varepsilon_F}{\hbar^2} \tag{2.73}$$

soit

$$k_F^3 = 3\pi^2 n = 3\pi^2\frac{N}{V} \tag{2.74}$$

Ainsi dans l'espace k, k_F représente une sphère contenant l'ensemble des états possibles. Cette sphère est souvent définie comme la sphère de Fermi. L'énergie totale est :

$$E = \sum_j < n_j > \varepsilon_j = \sum_j \frac{\varepsilon_j}{e^{(\varepsilon_j-\mu)/kT}+1} = \int_0^\infty \frac{\varepsilon g(\varepsilon)}{e^{(\varepsilon_j-\mu)/kT}+1} \tag{2.75}$$

A T=0, on a :

$$E_0 = G\frac{(2m)^{3/2}V}{4\pi^2\hbar^3}\int_0^{\varepsilon_{F0}} \varepsilon^{3/2}d\varepsilon \tag{2.76}$$

Ce qui donne une énergie moyenne par particule de :

$$\frac{E_0}{N} = \frac{3}{5}\varepsilon_{F0} \tag{2.77}$$

Rq : On dit qu'un gaz est complètement dégénéré lorsque tous les plus bas niveaux sont occupés.

On peut alors reformuler les conditions limites. Pour $kT << \varepsilon_F$, les effets quantiques sont dominants et pour $kT >> \varepsilon_F$, le gaz commence à devenir classique.

2.3.1.2 Comportement de l'Hugoniot

Il est intéressant à nouveau d'appliquer ces modèles à l'Hugoniot, c'est à dire pour un comportement dynamique. C'est ce qui a été réalisé par Nellis [18] pour un gaz libre d'électrons décrit avec la théorie de Fermi Dirac. L'équation d'état d'un gaz d'électrons libre est la même que pour un gaz monoatomique parfait, c'est à dire :

$$PV = \frac{2}{3}E \tag{2.78}$$

En utilisant cette expression et les équations de Rankine Hugoniot avec l'énergie, on peut exprimer le facteur de compression limite $\eta = \frac{\rho}{\rho_0}$ en fonction de la pression le long de l'Hugoniot, soit :

$$\eta = \frac{P_0 + 4P_H}{4P_0 + P_H} \tag{2.79}$$

Ainsi pour une pression très grande, le facteur de compression limite va tendre vers 4. L'énergie en fonction de η prend la forme :

$$E_H = \frac{4\eta - 1}{\eta\,(4-\eta)}E_0 \tag{2.80}$$

L'expression de l'énergie en fonction de la température est donnée par la théorie de Fermi-Dirac soit 2.63 et 2.66. Par un processus itératif, Nellis a essayé plusieurs températures jusqu'à trouver la température qui donne la même énergie que l'énergie de l'Hugoniot donnée par 2.80. La température en fonction de la pression a ainsi été déterminée et est présentée sur la figure 2.4.

Si on compare les Hugoniots de Li et Na avec des Hugoniots de gaz d'électrons libres, on voit que la pression est, pour Li, surestimée de 40% et, pour Na, sous-estimée de 50%. Cela met en évidence un problème important. On ne peut pas décrire de manière correcte un système sans prendre en compte les interactions entre les particules qui le composent.

CQFR : La théorie de Fermi-Dirac permet de décrire un gaz d'électrons sans interaction. La fonction de Fermi-Dirac

$$F(\varepsilon) = \frac{1}{e^{(\varepsilon-\varepsilon_F)/kT} + 1} \tag{2.81}$$

représente l'occupation moyenne d'un niveau d'énergie ε. L'énergie moyenne d'un électron est alors égale à $\frac{3}{5}\varepsilon_F$ avec $\varepsilon_F = \left(\frac{6\pi^2}{G}\right)^{2/3}\frac{\hbar^2}{2m}n^{2/3}$. La limite de compression d'un tel système le long de l'hugoniot est celle d'un gaz parfait et est égale à 4.

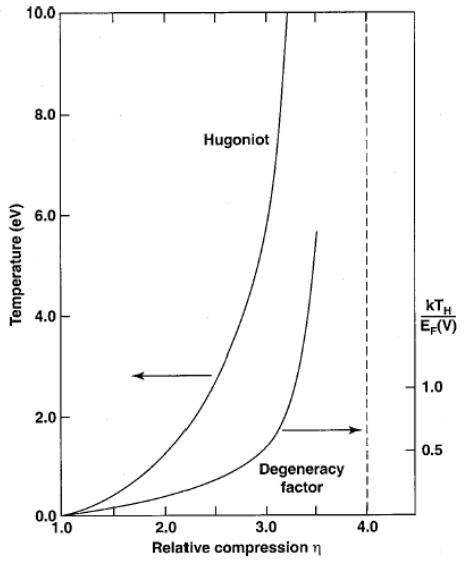


FIG. 2.4 – Température en fonction du facteur de compression pour un gaz libre d'électrons [18]. Le facteur de dégénérescence $kT/E_F(V,0)$ est aussi représenté. Lorsqu'il est inférieur à 1, soit ici pour des taux inférieurs 3.3, il y a dégénérescence. Pour des valeurs supérieures, les électrons sont classiques.

2.3.1.3 Equations de Hartree-Fock

La théorie de Fermi-Dirac permet de donner des ordres de grandeur, mais pour décrire de manière correcte le comportement d'un gaz d'électrons, il est nécessaire de prendre en compte les interactions. On va essayer de résoudre l'équation de Schrödinger en ne considérant pas un seul électron, mais en considérant une fonction d'onde Ψ pour les N-électrons en même temps :

$$\Sigma_{i=1}^{N}\left(-\frac{\hbar^2}{2m}\nabla_i^2\Psi - Ze^2\sum_R\frac{1}{|\mathbf{r}_i-\mathbf{R}|}\Psi\right)+\frac{1}{2}\sum_{i\neq j}\frac{e^2}{|\mathbf{r}_i-\mathbf{r}_j|}\Psi = E\Psi \tag{2.82}$$

Le second terme décrit l'interaction ion-électron où la position des ions est représentée par **R** et le troisième terme décrit l'interaction électron-électron.

La première hypothèse faite fut de considérer que Ψ pouvait être approximée par un produit de Hartree de N électrons indépendants mis sous la forme :

$$\Psi(\mathbf{r}_1 s_1,...,\mathbf{r}_N s_N) = \psi_1(\mathbf{r}_1 s_1)\psi_2(\mathbf{r}_2 s_2)...\psi_N(\mathbf{r}_N s_N) \tag{2.83}$$

et menant aux équations de Hartree. Cependant cette formulation ne permet pas de rendre compte du caractère antisymétrique des fonctions d'ondes des électrons. 2.83 est donc remplacée par un déterminant de Slater qui prend la forme :

$$\Psi(\mathbf{r}_1 s_1,...,\mathbf{r}_N s_N) = \begin{vmatrix} \psi_1(\mathbf{r}_1 s_1) & \psi_1(\mathbf{r}_2 s_2) & ... & \psi_1(\mathbf{r}_N s_{2N}) \\ \psi_2(\mathbf{r}_1 s_1) & \psi_2(\mathbf{r}_2 s_2) & ... & \psi_2(\mathbf{r}_N s_{2N}) \\ . & . & & . \\ \psi_N(\mathbf{r}_1 s_1) & \psi_N(\mathbf{r}_2 s_2) & ... & \psi_N(\mathbf{r}_N s_{2N}) \end{vmatrix} \tag{2.84}$$

On trouve alors après quelques transformations mathématiques une nouvelle forme pour l'équation de Schrödinger :

$$-\frac{\hbar^2}{2m}\nabla_i^2\psi_i(\mathbf{r}) - Ze^2\sum_R\frac{1}{|\mathbf{r}-\mathbf{R}|}\psi_i(\mathbf{r}) + [e^2\sum_j\int d\mathbf{r'}|\psi_j(\mathbf{r'})|^2\frac{1}{|\mathbf{r}-\mathbf{r'}|}]\psi_i(\mathbf{r})$$

$$-\sum_j\int d\mathbf{r'}\frac{e^2}{|\mathbf{r}-\mathbf{r'}|}\psi_j^*(\mathbf{r'})\psi_i(\mathbf{r'})\psi_j(\mathbf{r})\delta_{s_i s_j} = \varepsilon_i\psi_i(\mathbf{r}) \tag{2.85}$$

Le second terme caractérise l'interaction électron-ion comme précédemment, le troisième terme l'interaction électron-électron et enfin le quatrième, non présent dans les équations de Hartree, caractérise la répulsion que deux électrons de même spin peuvent avoir. Il est connu sous la dénomination de terme d'échange. Cet ensemble d'équations (i allant de 1 à N) 2.85 constitue les equations de Hartree-Fock. Même déjà simplifiées, ces équations restent très difficiles à résoudre à l'exception du gaz d'électrons libres. Dans ce dernier cas, le terme d'échange peut être évalué et est égal à [19] :

$$E_{echange} = -\frac{3}{4}\frac{e^2 k_F}{\pi} \tag{2.86}$$

Avant d'aller plus loin, il est important de noter que ces expressions sont approximatives et il apparaît lors des calculs que l'énergie trouvée par la méthode de Hartree-Fock diffère de l'énergie exacte du système. Cette différence est appelée "énergie de corrélation" et traduit le caractère approximatif des approximations faites et ainsi la difficulté de représenter les interactions électron-électron.

CQFR : Une première approche pour prendre en compte les interactions sont les équations de Hartree-Fock qui font apparaître un terme d'énergie d'échange (répulsion spin-spin) et un terme de corrélation (caractère approximatif des interactions modélisées).

2.3.2 Modèle de Thomas-Fermi

Nous venons de traiter avec le modèle Fermi Dirac le comportement d'un gaz d'électrons. La résolution des équations de Schrödinger avec les équations de Hartree-Fock sont une première étape vers la prise en compte des interactions entre électrons avec l'apparition du terme d'échange et du terme de corrélation.

Le modèle développé par Thomas (1927) et Fermi (1928) est une nouvelle étape vers le traitement des interactions. Il traite lui aussi d'un gaz d'électrons, mais ces électrons sont soumis à l'action d'un potentiel extérieur. Ce potentiel va prendre en compte la présence du champ d'un noyau par exemple, mais aussi de tous les effets d'écrantage des particules entre elles. Ce modèle permet de prendre en compte la contribution des électrons dans l'équation d'état des matériaux à hautes densités.

Le gaz d'électrons est considéré comme un gaz dégénéré placé dans un champ électromagnétique décrit par un potentiel $\phi(r)$. Ce potentiel $\phi(r)$ varie lentement avec la longueur d'onde de l'électron de telle manière qu'un grand nombre d'électrons soient contenus dans un domaine où $\phi(r)$ varie peu.

Calcul de la densité D'après la statistique de Fermi Dirac, le nombre d'électrons contenus dans une unité de volume est donnée par la formule :

$$n = \frac{N}{V} = G\frac{1}{2\pi^3\hbar^3}\int_0^\infty \frac{p^2 dp}{e^{(\varepsilon-\mu)/kT}+1} \tag{2.87}$$

Si les électrons sont soumis à un potentiel, la statistique de Fermi-Dirac peut s'appliquer dans la mesure où le champ varie peu sur une longueur de De Broglie et dans la mesure où cette variation est suffisamment lente pour pouvoir considérer des éléments de volume contenant un grand nombre de particules et dans lequel le champ serait constant. En prenant donc en compte le potentiel $V(r)$, le nombre d'électrons $(G = 2)$ prend alors la forme :

$$n(r) = \frac{1}{\pi^3\hbar^3}\int_0^\infty \frac{p^2 dp}{e^{((p^2/2m)+V(r)-\mu)/kT}+1} \tag{2.88}$$

Pour plus de simplicité nous ne nous intéresserons pour le moment que au cas $T = 0$. n(r) s'écrit alors [1] :

$$n(r) = \frac{[2m(\mu + e\phi)]^{3/2}}{3\pi^2\hbar^3} \tag{2.89}$$

où : $V(r) = -e\phi(r)$.

Pour que les équations soient cohérentes entre elles, il faut que la distribution de charges vérifient l'équation de Poisson, soit :

$$\nabla^2\phi = -4\pi e n(r) \tag{2.90}$$

Si l'on remplace n(r) par 2.90 dans 2.89, on obtient alors l'équation avec $\phi_0 = -\frac{\mu}{e}$ suivante :

$$\nabla^2(\phi - \phi_0) = \frac{4e}{3\pi\hbar^3}(2me)^{3/2}(\phi - \phi_0)^{3/2} \tag{2.91}$$

En considérant que le noyau de charge Ze est au milieu du système de coordonnées et en utilisant la symétrie sphérique et la nouvelle variable $\chi(r)$ définie comme $\phi - \phi_0 = \frac{Ze}{r}\chi(r)$, on obtient finalement l'équation :

$$\frac{d^2\chi}{dr^2} = \frac{4}{3\pi\hbar^3}(2me^2)^{3/2}\frac{Z^{1/2}}{r^{1/2}}\chi^{3/2} \tag{2.92}$$

Pour plus de simplicité, une nouvelle variable est introduite $x = r/\alpha$ avec $\alpha = \frac{1}{2}\left(\frac{3\pi}{4}\right)^{2/3}\frac{\hbar^2}{me^2}\frac{1}{Z^{1/3}}$. Ce qui donne finalement :

$$\frac{d^2\chi}{dr^2} = \frac{1}{x^{1/2}}\chi^{3/2} \tag{2.93}$$

2.93 est connu comme l'équation sans dimension de Thomas-fermi. Les conditions initiales de cette équation vont varier d'une situation à une autre. Par exemple pour un atome isolé, les conditions vont être : $\chi = 1$ en 0 et $\chi = 0$ à ∞. Cela revient à dire que lorsque r tend vers 0, le potentiel est essentiellement dû au noyau et se comporte comme Ze/r. Par contre, à l'infini, l'influence du noyau est nul. Pour un gaz d'atomes, les conditions changent légèrement. Quand r tend vers 0, le comportement reste le même et le potentiel est dû au noyau, donc $\chi = 1$ en 0. Par contre on ne peut pas utiliser la même condition à l'infini. On considère alors que l'espace est découpé en cellules individuelles représentant chacune un atome et électriquement neutre. La taille moyenne d'une cellule est :

$$\frac{4\pi}{3}r_0^3 = \frac{1}{n_a} \tag{2.94}$$

où n_a est la densité des atomes. Comme chaque cellule est électriquement neutre, le champ électrique s'annule en r_0. Ce qui donne la condition :

$$\frac{d\phi}{dr} = 0 \tag{2.95}$$

soit en utilisant la définition de ϕ et x :

$$\frac{x}{\chi(x)}\frac{d\chi}{dx} = 1 \tag{2.96}$$

en $x = x_0$.

Variations du modèle Le modèle présenté constitue une base et plusieurs modèles plus complets ont été développés ensuite. Le modèle de Thomas-Fermi-Dirac (TFD) prend en compte une énergie d'échange due à l'effet du caractère antisymétrique des fonctions électroniques sur l'énergie électrostatique d'interaction. Cette énergie prend la forme [1] :

$$E = -\frac{3}{4}e^2\left(\frac{3}{\pi}\right)^{1/3}\int n^{4/3}d\tau \tag{2.97}$$

L'équation de Thomas-Fermi est alors légèrement différente. Un autre modèle appelé Thomas-Fermi corrigé (TFC) prend en compte en plus des corrections quantiques. La figure 2.5 [1] présente une comparaison à $T = 0$ des résultats obtenus avec les différents modèles. On voit ainsi que le modèle de Thomas-Fermi simple est le plus éloigné des données expérimentales. Les termes d'échange-corrélation, mais aussi les termes quantiques doivent être pris en compte.

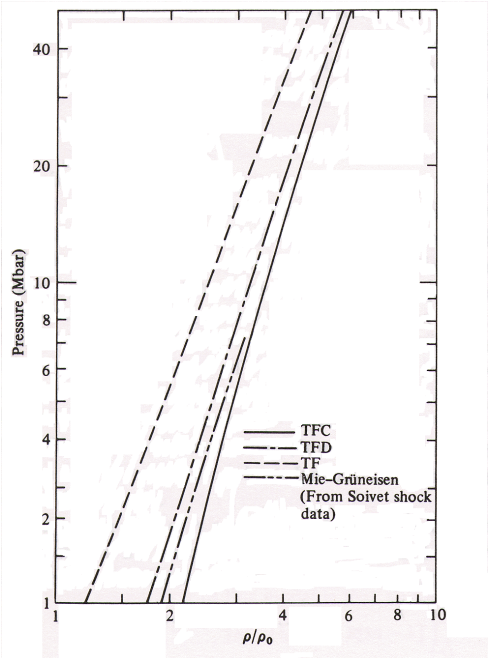


FIG. 2.5 – Comparaison à $T = 0$ des résultats obtenus pour du fer avec les différents modèles TF, TFC, TFD. La courbe expérimentale a été obtenue par Altshuler et al. à partir d'une équation d'état semi empirique de type Mie-Gruneisen

Calcul pour $T \neq 0$ Tous les calculs précédents ont été réalisés pour T=0. Pour des températures non nulles, le raisonnement est le même. La nouvelle variable prend la forme :

$$\Psi(\xi) = \frac{e(\phi - \phi_0)}{kT}\xi = \frac{e(\phi - \phi_0)}{kT}\frac{r}{r_0} \tag{2.98}$$

et l'équation de Thomas Fermi s'écrit :

$$\frac{d^2\Psi(\xi)}{d\xi^2} = \left(\frac{r_0}{c}\right)^2 I_{1/2}\frac{\Psi(\xi)}{\xi} \tag{2.99}$$

avec :

$$c = \left(\frac{\pi\hbar^3}{4me^2(2mkT)^{1/2}}\right)^{1/2} \tag{2.100}$$

et

$$I_n(\eta) \equiv \int_0^\infty \frac{y^n dy}{e^{y-\eta} + 1} \tag{2.101}$$

Nous n'entrerons pas dans la résolution mais le raisonnement est identique à celui fait pour T=0.

CQFR : Un gaz d'électrons peut être décrit soit par la théorie de Fermi-Dirac si on considère que les électrons sont libres, soit par la théorie de Thomas-Fermi lorsque ces électrons sont soumis à un champ extérieur, le champ de l'atome par exemple.

2.3.3 Théorie de la fonctionnelle de la densité

La description du gaz d'électrons et le formalisme de Thomas-Fermi a permis de montrer la difficulté d'estimer la corrélation électronique. Résoudre l'Halmitonien qui décrit un système est un problème many-body complexe. Pour contourner la difficulté d'évaluer les fonctions d'onde, Hohenberg et Kohn [20] ont développé un nouveau formalisme appelé par la suite "théorie de la fonctionnelle de la densité" (DFT) où la base n'est pas la fonction d'onde totale du système mais la densité électronique n(**r**). L'approche de la DFT permet de transformer le problème en un formalisme à un paramètre.

Cette théorie est basée sur deux théorèmes [11] :

HK 0.1 *La densité n(**r**) associée à l'état fondamental d'un système d'électrons en interaction placés dans un potentiel extérieur v(**r**) détermine de façon unique (à une constante additive près) ce potentiel.*

Cela revient à dire que toutes les propriétés de l'état fondamental peuvent être exprimées en fonction de cette densité et uniquement en fonction de celle ci. L'énergie cinétique, l'énergie potentielle ou l'énergie totale peuvent donc s'écrire : T(n), V(n) et E(n) respectivement. On peut alors construire une fonctionnelle F(n(**r**)) telle que l'énergie E(n) s'écrive :

$$E(n) = \int d\mathbf{r} v(\mathbf{r}) n(\mathbf{r}) + F(n) \tag{2.102}$$

HK 0.2 *Quel que soit n(**r**) satisfaisant n(**r**)≥0 et $\int d\mathbf{r} n(\mathbf{r}) = N$, on a $E(n(\mathbf{r})) \geq E_0$ où E_0 désigne l'énergie fondamentale du système.*

Formulé autrement, cela veut dire que l'énergie E(n(**r**)) est minimale lorsque n(**r**) est la densité associée au fondamental. Ce théorème est une conséquence directe du principe variationnel. Le nombre de particules étant constant $\int d\mathbf{r} n(\mathbf{r}) = N$, on obtient en introduisant un multiplicateur de Lagrange μ :

$$\delta(E(n) - \mu \int d\mathbf{r} n(\mathbf{r})) = 0 \tag{2.103}$$

soit :

$$\mu = \frac{\delta E(n)}{\delta n(\mathbf{r})} = v(\mathbf{r}) + \frac{\delta F(n)}{\delta n(\mathbf{r})} \tag{2.104}$$

Cela est valable seulement si les densités électroniques trouvées sont bien associées à des fonctions d'onde antisymétriques dans l'équation de Shrödinger (problème de v-représentabilités [11]). Lorsqu'on cherche la densité qui va minimiser l'énergie, il faut bien vérifier que cette densité corresponde à une fonction d'onde antisymétrique pour un système de N électrons placés dans un potentiel v(**r**).

Il faut maintenant déterminer la fonctionnelle F(n) ce qui n'est pas sans difficulté. F(n) est souvent représentée comme la somme de 2 termes : un terme d'énergie cinétique et un terme d'interaction.

$$F(n) = T(n) + V_{ee}(n) \tag{2.105}$$

Dans l'approche de Kohn et Sahn [21], le problème d'un système d'électrons en interaction est remplacé par un système fictif d'électrons n'interagissant pas, mais évoluant dans un potentiel fictif. L'énergie cinétique $T(n)$ est remplacée par l'énergie cinétique d'un gaz d'électrons sans interaction $T_S(n)$. On a alors :

$$F(n) = T_S(n) + J(n) + Exc(n) \tag{2.106}$$

$J(n)$ représente le terme coulombien classique et le potentiel d'intéraction $Exc(n)$ prend en compte toutes les corrections : d'échange, de corrélation mais aussi d'énergie cinétique. $F(n)$ prend alors la forme :

$$F(n) = T_S(n) + J(n) + Exc(n) = \sum_{i=1}^{N} \sum_{S} \langle \psi_i \left| -\frac{\hbar^2}{2m} \nabla^2 \right| \psi_i \rangle + \frac{e^2}{2} \int \int d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 \frac{n(\mathbf{r}_1) n(\mathbf{r}_2)}{|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} + Exc(n) \tag{2.107}$$

Le gaz d'électrons sans interaction est donc soumis à un potentiel fictif $v_{eff}(\mathbf{r})$. L'équation de Schrödinger s'écrit alors :

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2m} \nabla^2 + v_{eff}(\mathbf{r}) \right) \psi_i(\mathbf{r}) = \epsilon_i \psi_i(\mathbf{r}) \tag{2.108}$$

de telle manière que

$$n(\mathbf{r}) = \sum_{i=1}^{N} \sum_{S} |\psi_i(\mathbf{r}, s)|^2 \tag{2.109}$$

Le potentiel effectif est trouvé en dérivant F(n) par rapport à n(**r**)et prend la forme :

$$v_{eff}(\mathbf{r}) = v(\mathbf{r}) + e^2 \int d\mathbf{r'} \frac{n(\mathbf{r'})}{|\mathbf{r} - \mathbf{r'}|} + v_{xs}(\mathbf{r}) \tag{2.110}$$

où $v_{xs}(\mathbf{r}) = \frac{\delta E_{xs}(n)}{\delta n(\mathbf{r})}$. Les densités test minimisant l'énergie E(n) doivent donc être solutions du système constituées par 2.108, 2.109, 2.110. On a ainsi une procédure pour trouver la densité recherchée. Cependant il reste à expliciter le terme d'énergie d'échange/corrélation E_{xs} et c'est la que se trouve toute la difficulté du problème.

L'expression la plus simple pour le terme d'échange-corrélation est l'approximation locale de la densité (LDA).

$$E_{xs}(n(\mathbf{r})) = \int d\mathbf{r} n(\mathbf{r}) \epsilon_{xs}(n(\mathbf{r})) \tag{2.111}$$

où $\epsilon_{xs}(n(\mathbf{r}))$ est l'énergie d'échange corrélation par électron dans un gaz uniforme d'électrons à la densité n. Cette quantité a été calculée par des simulations de Monte Carlo Quantique. En pratique, des formules paramétriques ajustées sur des données expérimentales sont souvent employées.

D'autres méthodes ont été développées par la suite pour mieux définir cette énergie, en particulier en essayant d'introduire le gradient de la densité électronique dans les expressions (Generalized Gradient Approximation, GGA). Cependant ces formes de potentiels d'échange-corrélation sont des approximations qu'il faut valider par une comparaison théorie-expérience.

Une autre approche, plus thermodynamique, est décrite dans [22] et peut aider à se donner une idée globale sur la DFT.

CQFR : Dans l'approche ab-initio, seules les particules élémentaires, électrons et noyaux, sont considérées et interagissent entre elles par la force coulombienne. Il suffit alors de résoudre l'équation de Schrödinger pour le système obtenant alors un spectre d'états liés qui va former les atomes et les molécules. La seule hypothèse et la grande difficulté de cette méthode est la description de l'énergie d'échange corrélation. La résolution de ce problème many-body complexe est impossible. L'approche de la fonctionnelle de la densité permet de transformer ce problème en un formalisme à une variable, la densité électronique. Cette méthode très puissante est cependant limitée à hautes températures. En effet les états excités sont alors de plus en plus nombreux et il devient impossible de les décrire tous.

2.4 Ionisation et conductivité

Les premiers modèles que nous venons de voir permettent de décrire des systèmes dans lesquels les particules sont bien définies et ne varient pas. Nous allons aborder maintenant des systèmes où la nature des particules et leur nombre peuvent changer au cours du temps. Nous allons voir en particulier le cas de l'ionisation avec l'apparition d'électrons libres dans le milieu et les nouvelles propriétés qui en découlent comme la conductivité.

2.4.1 Equation de Saha

L'équation de Saha date de 1919 et c'est la première formulation établie pour essayer de modéliser l'ionisation d'un gaz. Elle a été largement modifiée et complétée par la suite, mais l'équation originelle est encore très utilisée. Le raisonnement est similaire à celui fait pour la dissociation.

Considérons la relation d'ionisation suivante :

$$M_n \rightleftarrows M_{n-1} + e^- \tag{2.112}$$

Cette équation peut se mettre sous la forme :

$$\sum \nu_i A_i = 0 \tag{2.113}$$

avec $A_1 = M_n$, $A_2 = M_{n-1}$, $A_3 = e^-$, $\nu_1 = 1$, $\nu_2 = -1$ et $\nu_3 = -1$. La réaction chimique a lieu à température et pression constante. Donc l'énergie de Gibbs du système doit être minimum par rapport à chaque espèce.

$$\frac{dG}{dN_1} = \frac{\partial G}{\partial N_1} + \frac{\partial G}{\partial N_2}\frac{\partial N_2}{\partial N_1} + ... \tag{2.114}$$

$\frac{\partial N_2}{\partial N_1}$ représente le changement de N_2 lorsque N_1 varie et est obtenu d'après 2.113 :

$$\frac{\partial N_2}{\partial N_1} = \frac{\nu_2}{\nu_1} \tag{2.115}$$

On obtient alors :

$$\sum_i \frac{\partial G}{\partial N_i}\frac{\nu_i}{\nu_1} = 0 \tag{2.116}$$

Comme $G = \sum_i \mu_i N_i$, on a finalement :

$$\sum_i \mu_i \nu_i = 0 \tag{2.117}$$

Comme nous l'avons vu plus haut pour un gaz de particules sans interaction, μ_i s'écrit :

$$\mu_i = kTlnP_i + \chi_i(T) \tag{2.118}$$

avec

$$\chi_i(T) = -kTln\left[\left(\frac{m_i}{2\pi\hbar^2}\right)^{3/2}(kT)^{5/2}\sum_n e^{-\frac{\varepsilon'_{in}}{kT}}\right] \tag{2.119}$$

ε'_{in} étant l'énergie interne des niveaux pour l'espèce i. En reprenant 2.112, 2.117, 2.118 et la définition de la fonction de partition Q, $Q_i = \sum_n e^{-\frac{\varepsilon_{in}}{kT}}$ on trouve :

$$\ln\left(\frac{P_{M_n}P_e}{P_{M_{n-1}}}\right) \approx -\frac{\psi_n}{kT} + \frac{5}{2}\ln T + \ln\left(\left(\frac{m_e}{2\pi\hbar^2}\right)^{3/2}k^{5/2}\right) + \ln\left(2\frac{Q_n}{Q_{n-1}}\right) \tag{2.120}$$

où $\psi_n = \varepsilon_{0,n} - \varepsilon_{0,n-1}$, $m_{n-1} \simeq m_n$ et $Q_e = 2$ à cause de la dégénérescence du spin de l'électron. $\frac{Q_{n-1}}{Q_n}$ peut être approximé par $\frac{g_{n-1,0}}{g_{n,0}}$, où $g_{n,0}$ représente le poids statistique de l'état fondamental. Dans une première approximation, ce dernier terme peut être négligé. On peut maintenant introduire la fraction ε d'atomes ionisés. Considérons pour l'exemple que c'est une ionisation simple et que n=1.

$$M \rightleftarrows M^+ + e^- \tag{2.121}$$

On a alors :

$$P_{M^+} = P_{e^-} = \frac{N}{V}\varepsilon kT \tag{2.122}$$

$$P_M = \frac{N}{V}(1-\varepsilon)kT \tag{2.123}$$

N est le nombre d'atomes neutres. On obtient alors en fonction de la pression totale P, $P = P_M + P_{M^+} + P_{e^-}$:

$$log\left(\frac{\varepsilon^2}{1-\varepsilon^2}P(atm)\right) \approx -\frac{5035I(eV)}{T(K)} + \frac{5}{2}logT - 6.48 + log\left(2\frac{g_{atome}}{g_{ion}}\right) \tag{2.124}$$

où $I = \psi_1$ est l'énergie d'ionisation du premier niveau. On peut alors voir que la fraction d'ionisation croît avec la température, mais diminue avec la pression. Il faut en effet voir la recombinaison comme un processus à 3 corps (atome, ion, électron [23]) favorisé lorsque la densité augmente. L'ionisation, elle, n'est qu'un processus à 2 corps et augmente avec la température.

Ce modèle est une bonne approximation dans des conditions normales de pression et température, mais il montre ses limites à très hautes densités. En effet l'équation 2.124 conduit au résultat non physique que, quelque soit la température, l'ionisation sera nulle lorsque la densité va augmenter. Pour corriger ce problème, il apparaît donc nécessaire de prendre en compte les interactions.

2.4.2 Ionisation en pression

Prendre en compte l'environnement extérieur et les interactions entre les particules constituant le plasma entraîne 4 modifications importantes [24].

1 : Le puits de potentiel dans lequel se trouvent les ions et les électrons est maintenant déterminé par le plasma environnant. Cela donne lieu à des effets appelés "self-energy effects".

2 : Les forces coulombiennes sont écrantées par la présence du plasma (longueur de Debye classique/ Thomas-Fermi quantique) et on observe ainsi un déplacement dans les niveaux d'énergie interne.

3 : La présence d'électrons environnant limite, par le principe d'exclusion de Pauli, les niveaux d'énergie accessibles. Un électron ne pourra pas prendre un niveau d'énergie déjà occupé par un électron du plasma.

4 : A cause des collisions entre les électrons de liaison et les électrons du plasma, la durée de vie des états de liaison est limitée.

En majorité, les déplacements des niveaux d'énergie sont dus aux deux premiers points. Il faut donc, pour tenir compte de ces effets, remplacer les valeurs réelles des énergies des niveaux par des valeurs effectives. Cela donne pour un niveau d'énergie k et pour un ion de charge Z-1 :

$$\widetilde{E}_k^{Z-1} = E_k^{Z-1} + \Delta_e + \Delta_Z + \Delta_k^{Z-1} \tag{2.125}$$

où le deuxième et le troisième terme à droite correspondent aux déplacements dus aux self-energy des électrons et des ions et le dernier terme correspond au déplacement de Debye. Les énergies Δ_e et Δ_Z sont données approximativement par [24] :

$$\Delta_e = -\frac{1}{2}\frac{e^2}{d}; \Delta_Z = -\frac{1}{2}\frac{Z^2e^2}{d} \tag{2.126}$$

avec d la longueur de Debye.

L'énergie d'ionization est le gap entre le niveau fondamental et le niveau correspondant au continuum et on peut montrer que :

$$I_1^{Z-1} = \widetilde{E}_\infty^{Z-1} - \widetilde{E}_1^{Z-1} = |E_1^{Z-1}| - \Delta_1^Z \tag{2.127}$$

$\Delta I = \Delta_1^Z$ peut être évalué de manière théorique à partir de la méthode de Debye Hückel. On obtient alors une expression de la forme pour une ionisation simple [6] :

$$\Delta I = \frac{Ze^2}{d} \tag{2.128}$$

soit pour Z=1, avec n le nombre de particules/cm^3 et ε le degré de ionisation :

$$\Delta I = 2e^3 \left(\frac{2\pi n\varepsilon}{kT}\right)^{1/2} \tag{2.129}$$

L'équation modifiée de Saha prend alors la forme :

$$log\left(\frac{\varepsilon^2}{1-\varepsilon^2}P(atm)\right) \approx -\frac{5035I(eV)}{T(K)} + \frac{5}{2}logT - 6.48 + \frac{\Delta I}{kT} \tag{2.130}$$

CQFR : L'équation de Saha et sa forme modifiée représentent une approche thermodynamique simple du phénomène d'ionisation, phénomène qui dépend à la fois de la température et de la pression. Ce modèle présente cependant certaines limites aux hautes densités. Il faut alors faire appel à des théories plus précises.

L'ionisation est un phénomène très important car il représente le passage d'un milieu constitué de particules neutres à un milieu plasma où les particules sont maintenant des particules chargées. L'ensemble des propriétés du milieu va alors changer. Nous avons vu avec l'équation de Saha une approche thermodynamique nous donnant les relations entre les variables macroscopiques du milieu comme la pression et la température. Nous allons dans les paragraphes suivants aborder une approche plus microscopique et nous intéresser à la conductivité, grandeur caractéristique d'un système présentant des électrons libres.

2.4.3 Modèle de bandes : fermeture du gap

Les électrons dans un cristal sont soumis au potentiel périodique de ce cristal et ont ainsi, lorsqu'on résoud l'équation de Shrödinger, des niveaux d'énergie accessibles bien définis. Si les électrons sont assez nombreux pour remplir totalement toutes les bandes d'énergie jusqu'à un certain niveau et qu'il y a un grand gap avec le niveau suivant, ce système sera considéré, à température nulle, comme un isolant. Si le gap est suffisamment grand, le système pourra rester isolant même si la température augmente. Si le dernier niveau d'énergie n'est pas totalement rempli à température nulle et a fortiori aux températures plus élevées, le système est considéré comme un métal. Si par contre le dernier niveau est complètement rempli et que la différence avec le niveau supérieur suivant est faible, on peut imaginer que ce système isolant à température nulle, devienne conducteur aux températures plus élevées, des électrons passant alors dans le niveau supérieur par excitation thermique. On a alors un système semi-conducteur. La dernière bande d'énergie occupée est appelé bande de valence et la bande la plus basse non occupée la bande de conduction. La figure 2.6 illustre ces modèles.

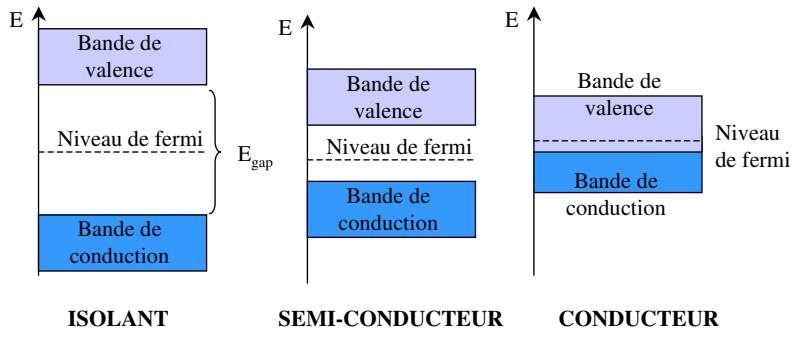


FIG. 2.6 – Théorie des bandes : dans un isolant le gap est en général supérieur à 5 eV. Pour un semi-conducteur, il est de 1 eV. Pour un conducteur, il y a recouvrement entre la bande de conduction et la bande de valence.

On peut calculer le nombre d'électrons dans la bande de conduction en utilisant la théorie de Fermi-Dirac. La densité des états d'énergie de conduction est donnée par l'équation 2.65, $g(E) = G\frac{(2m)^{3/2}V}{4\pi^2\hbar^3}E^{1/2}$ où E a été remplacé par E-E$_c$, E$_c$ étant l'énergie du niveau de conduction le plus bas. On ne prend en compte que les niveaux d'énergie dans la bande de conduction. On obtient donc pour un métal la densité des états suivante :

$$g(E) = \frac{8\sqrt{2}\pi m^{3/2}}{h^3}\sqrt{E - E_c} \tag{2.131}$$

La probabilité qu'un niveau E soit occupé est donné par la fonction de Fermi-Dirac :

$$f(E) = \frac{1}{e^{(E-\mu)/kT} + 1} \tag{2.132}$$

La densité de population des électrons peut donc être écrite sous la forme :

$$n_c(E) = \int_{E_c}^{\infty} g(E)f(E)dE \tag{2.133}$$

De la même manière, on peut évaluer le nombre de trous dans la bande de valence, soit :

$$p_v(E) = \int_{-\infty}^{E_c} g(E)(1 - f(E))dE \tag{2.134}$$

On peut montrer, en supposant que $E_c - \mu >> k_BT$ [25], que :

$$n_c(E) = N_c(T)e^{-(E_c-\mu)/k_BT} \tag{2.135}$$

et

$$p_v(E) = P_v(T)e^{-(\mu-E_v)/k_BT} \tag{2.136}$$

avec

$$N_c(T) = \int_{E_c}^{\infty} g_c(E)e^{-(E-E_c)/k_BT} \tag{2.137}$$

$$P_v(T) = \int_{-\infty}^{E_v} g_v(E)e^{-(E_v-E)/k_BT} \tag{2.138}$$

Dans un cristal pur sans impureté, le nombre d'électrons dans la bande de conduction est égal au nombre de trous dans la bande de valence. On a alors :

$$n_cp_v = n_i^2 = N_c(T)P_v(T)e^{-E_g/k_BT} \tag{2.139}$$

où E_g est le gap entre la bande de conduction et la bande de valence. Le nombre d'électrons de conduction est donc directement lié au gap et à la température. Dans un milieu désordonné (présence d'impuretés et d'un champ extérieur), les relations ne sont plus si simples et le nombre d'électrons présents dans la bande de conduction est alors relié à sa mobilité au sein du crystal.

La position de chaque bande et en particulier des bandes de conduction et de valence peut être calculé à partir de l'équation de Shrödinger. Dans la mesure où la distance entre les atomes est suffisamment grande, l'électron a des niveaux d'énergie E_0, E_1,...E_n et des fonctions d'ondes ϕ_0, ϕ_1,...ϕ_n défini par le potentiel d'un atome isolé. Lorsque la distance interatomique est de l'ordre de l'extension spatiale de la fonction d 'onde, l'électron va commencer à sentir l'influence des atomes voisins. Il ne sera plus soumis au potentiel de l'atome isolé, mais au potentiel du crystal (voir figure 2.7). Sa fonction d'onde sera alors modifiée et on va observer un élargissement de chaque bande d'autant plus grand que la distance entre les atomes diminuent. Lorsque les atomes sont suffisamment proches, la bande de conduction et la bande de valence vont se recouvrir entraînant ainsi la fermeture du gap et donc le passage d'un milieu isolant à un milieu conducteur (voir figure 2.7).

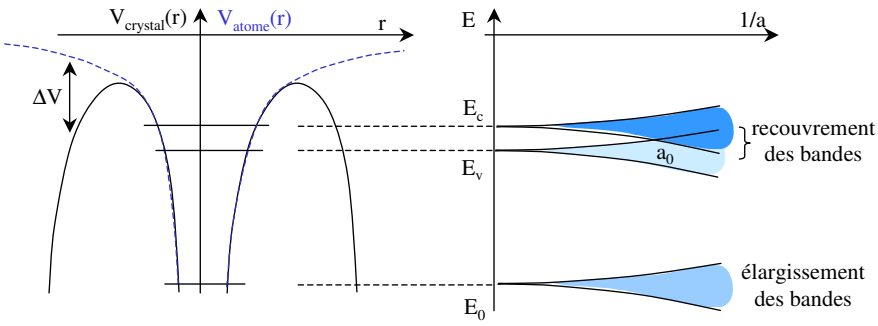


FIG. 2.7 – Élargissement des bandes. La figure de gauche présente le potentiel V(r) du crystal ainsi que le potentiel d'un atome isolé en bleu. La différence est notée ΔV. La figure de droite présente les niveaux énergétiques en fonction de l'inverse de la distance interatomique. Lorsque les atomes sont éloignés, les intégrales de recouvrement sont faibles. Mais lorsqu'ils sont proches, les niveaux d'énergie s'élargissent entraînant de forts recouvrements. Lorsque la bande de conduction et la bande de valence se recouvrent ainsi, on passe d'un milieu isolant à un milieu conducteur à a=a_0

CQFR : Le modèle des semi conducteurs permet d'avoir une vision plus précise du phénomène d'ionisation. Les électrons sont répartis suivant des niveaux d'énergie. Le dernier niveau rempli est appelé bande de valence et le premier niveau suivant vide est appelé bande de conduction. L'occupation de chaque niveau est déterminé par la statistique de Fermi-Dirac.

Ces bandes d'énergie accessibles au sein du cristal s'élargissent lorsque la distance interatomique diminue. Lorsque la distance est suffisamment petite, on observe un recouvrement entre la bande de valence et la bande de conduction. Il y a fermeture du gap. On passe alors d'un milieu isolant à un milieu conducteur.

2.4.4 Modèle de Drude

Les propriétés optiques d'un matériau sont reliés à sa densité électronique et aux fluctuations de charge à l'intérieur. Les électrons libres (excitation thermique ou fermeture du gap en pression) vont donc circuler au sein du système entraînant une conductivité non nulle se manifestant ainsi par une réflectivité non nulle. Plusieurs modèles existent pour décrire ce phénomène. Nous allons nous intéresser au modèle le plus utilisé, le modèle de Drude. Ce modèle est basé sur plusieurs hypothèses :

1 : L'électron (ou le trou) est considéré comme une particule classique.

2 : La probabilité qu'un électron subisse une collision pendant le temps dt est constante et égale à $1/\tau$.

3 : Entre chaque collision, l'électron a une trajectoire rectiligne et n'est pas affecté par la position des ions (excepté lors de la collision). Cela revient à dire que les électrons sont libres entre chaque collision. On néglige les interactions électrons-ions, mais aussi électrons-électrons.

4 : La direction de la vitesse d'un électron après une collision est aléatoire et leur énergie est déterminée par la température.

En présence d'une force extérieure **f**, on peut faire un raisonnement simple pour trouver le mouvement d'un électron : soit p(t) la quantité de mouvement de l'électron au temps t et p(t+dt) à un temps très court après. Cet electron a une probabilité dt/τ d'avoir une collision pendant l'intervalle dt et une probabilité 1-dt/τ de ne pas en avoir. Si on considère un électron ne subissant pas de collision, sa contribution sera la somme de son moment à t et la variation due à la présence de la force, le tout multiplié par la probabilité que effectivement cet électron n'ait pas subi de collision, soit :

$$\left(1-\frac{dt}{\tau}\right)(p(t)+f(t)dt) \tag{2.140}$$

Considérons maintenant un électron subissant une collision. Comme la direction de sa vitesse est aléatoire après la collision, en moyenne, la contribution de p(t) sera nulle et le seul changement de moment sera dû à f(t), soit :

$$\frac{dt}{\tau}f(t)dt \tag{2.141}$$

L'expression du moment au temps t+dt peut donc s'écrire :

$$p(t+dt)=\left(1-\frac{dt}{\tau}\right)(p(t)+f(t)dt)+\frac{dt}{\tau}f(t)dt \tag{2.142}$$

En ne gardant que les termes au premier ordre, on trouve finalement :

$$p(t+dt)-p(t)=-\frac{dt}{\tau}p(t)+f(t)dt \tag{2.143}$$

En prenant dt suffisamment petit, on a :

$$\frac{d\mathbf{p}(t)}{dt}=\mathbf{f}(t)-\frac{\mathbf{p}(t)}{\tau} \tag{2.144}$$

Le deuxième terme du membre de droite représente le "ralentissement" de la vitesse moyenne dû aux collisions.

Prenons un cas qui nous intéresse particulièrement où la force **f**(t) est un champ électrique de la forme : **E**(t)=Re(**E**(ω)e$^{-i\omega t}$. **f**(t) est alors égale à -e**E**. En cherchant une solution de la forme : **p**(t)=Re(**p**(ω)e)$^{-i\omega t}$), on trouve :

$$-i\omega\mathbf{p}(\omega)=-\frac{\mathbf{p}(\omega)}{\tau}-e\mathbf{E}(\omega) \tag{2.145}$$

Le courant électrique s'écrit alors :

$$\mathbf{j}(t)=-en_e<\mathbf{v}(t)>=-\frac{e^2\mathbf{E}n_e}{m(1/\tau+i\omega)}e^{i\omega t} \tag{2.146}$$

ce qui donne l'expression de la conductivité $\mathbf{j}(\omega)=\sigma(\omega)\mathbf{E}(\omega)$:

$$\sigma(\omega)=\frac{e^2n_e\tau}{m(1+i\omega\tau)} \tag{2.147}$$

Toute la difficulté du problème réside dans l'évaluation de τ, temps entre 2 collisions. Il peut être défini comme le rapport entre le libre parcours moyen d et la vitesse v de l'électron soit :

$$\tau = \gamma \frac{d}{v} \tag{2.148}$$

avec $\gamma \geq 1$.

D'après le principe de Drude, on ne prend en compte que les interactions électrons-ions. On peut donc définir le libre parcours moyen à partir de la section efficace d'interaction électron-ions. Si on considère N_i ions par unité de volume et la section efficace S(θ) de déviation d'un électron à un angle θ dans l'angle solide dω, on a [26] :

$$\frac{1}{d} = N_i \int S(\theta)(1 - cos\theta) d\omega \tag{2.149}$$

Si on approxime d par d$\sim$ $n^{-1/3}$, où n est la densité de particules autres que les électrons (les interactions électrons-électrons sont négligées), le problème revient à estimer la vitesse v des électrons.

Estimation de la vitesse des électrons On peut faire plusieurs hypothèses.

1 : La température électronique est supérieure à la température de Fermi.On peut donc considérer que les électrons sont classiques. Leur énergie cinétique est alors égale à $\frac{3}{2}kT$.

$$v = \left(\frac{3kT}{m}\right)^{1/2} = 6.75\sqrt{T}10^3 m/s \tag{2.150}$$

2 : La température électronique est inférieure à la température de Fermi. Les électrons sont complètement dégénérés et leur énergie est égale à l'énergie du niveau de Fermi.

$$v = \frac{h}{2m}\left(\frac{3n_e}{\pi}\right)^{1/3} = 3.58 * 10^{-4} n_e^{1/3} \tag{2.151}$$

3 : La température est de l'ordre de grandeur de la température de Fermi. Aucune approximation simple ne peut être faite. On utilise alors la théorie des semi conducteurs décrites plus haut pour les décrire. Leur énergie cinétique moyenne est donnée par :

$$< E >= \frac{\int_{E_c}^{\infty} g(E) f(E) E dE}{\int_{E_c}^{\infty} g(E) f(E) dE} \tag{2.152}$$

Il faut alors faire des hypothèses sur la valeur de E_g.

CQFR : Le modèle de Drude permet d'estimer la conductivité à partir d'hypothèses simples. Le temps moyen τ entre chaque collision peut être défini comme le produit entre la vitesse des électrons et leur libre parcours moyen. Si on approxime le libre parcours moyen par la distance interatomique, la difficulté du problème revient à estimer la vitesse des électrons. Bien que dans des conditions extrêmes, les interactions électrons-électrons ne pourront plus être négligées et le temps moyen entre chaque collision ne sera pas forcément constant, ce modèle donne une première approche simple du problème de la conductivité.

2.4.5 Relation entre réflectivité et conductivité

Expérimentalement, la seule mesure à laquelle nous avons accès est la mesure de la réflectivité du front réfléchissant. Il est donc intéressant de voir comment relier cette réflectivité à la conductivité du milieu.

2.4.5.1 Propagation du champ dans le milieu

En utilisant les relations de Maxwell dans un matériau de conductivité σ et de constante diélectrique ε_r :

$$\overrightarrow{rot}\overrightarrow{H} = \overrightarrow{j} + \frac{\partial \overrightarrow{D}}{\partial t} \tag{2.153}$$

$$\overrightarrow{rot}\overrightarrow{D} = -\frac{\epsilon_r}{c^2}\frac{\partial \overrightarrow{H}}{\partial t} \tag{2.154}$$

et la loi d'Ohm :

$$\overrightarrow{j} = \sigma \overrightarrow{E} = \frac{\sigma}{\varepsilon_0 \varepsilon_r}\overrightarrow{D} \tag{2.155}$$

on trouve, pour une onde incidente $\overrightarrow{E}e^{-i(\omega t - kx)}$, la relation de dispersion suivante :

$$k^2 = \frac{\omega^2}{c^2}\left(\varepsilon_r - i\frac{\sigma}{\sigma_c}\right) \tag{2.156}$$

avec $\sigma_c = \omega\varepsilon_0$. k se met alors sous la forme $k = k' + ik'' = k_0(n_r + in_i) = \frac{\omega}{c}(n_r + in_i)$. n_r est l'indice optique réel et n_i est l'indice optique imaginaire. Si on remplace σ par son expression déterminée par le modèle de Drude $\sigma = \frac{ne^2\tau}{m(1-i\omega\tau)} = \frac{\sigma_0}{1+i\omega\tau}$, on a :

$$n_r^2 - n_i^2 = \varepsilon_r - \frac{ne^2}{\varepsilon_0 m}\frac{\tau^2}{1+\omega^2\tau^2} \tag{2.157}$$

$$2n_r n_i = \frac{ne^2\tau}{\varepsilon_0 m}\frac{\tau}{\omega(1+\omega^2\tau^2)} \tag{2.158}$$

2.4.5.2 Relation avec la conductivité

Le laser sonde se réfléchit donc à l'interface d'un milieu 2 choqué conducteur d'indice optique et de conductivité inconnu et d'un milieu 1 non choqué, non conducteur dont on connaît les caractéristiques. En écrivant la continuité des champs et de leur dérivée à l'interface, on trouve :

$$\overrightarrow{E_i} + \overrightarrow{E_r} = \overrightarrow{E_t} \tag{2.159}$$

$$i(k_1' - ik_1'')(\overrightarrow{E_i} - \overrightarrow{E_r}) = i(k_2' - ik_2'')\overrightarrow{E_t} \tag{2.160}$$

Ce qui donne :

$$R = \frac{\|\overrightarrow{E_r}\|^2}{\|\overrightarrow{E_i}\|^2} = \frac{(k_2' - k_1')^2 + (k_2'' - k_1'')^2}{(k_2' + k_1')^2 + (k_2'' + k_1'')^2} \tag{2.161}$$

Dans notre cas, la conductivité du milieu 2 est très supérieure à la conductivité du milieu 1, $\sigma_2 \gg \sigma_1$, donc $k_2'' \gg k_1''$. On obtient finalement :

$$R = \frac{(n_{r2} - n_1)^2 + n_{i2}^2}{(n_{r2} + n_1)^2 + n_{i2}^2} \tag{2.162}$$

La figure 2.8 présente un schéma récapitulatif permettant de relier la réflectivité mesurée à la valeur du gap.

CQFR : On peut relier la réflectivité du front réfléchissant à l'indice réel et imaginaire du milieu, eux mêmes reliés à la conductivité du milieu qui par l'intermédiaire du modèle de Drude permet de remonter à la densité électronique du système.

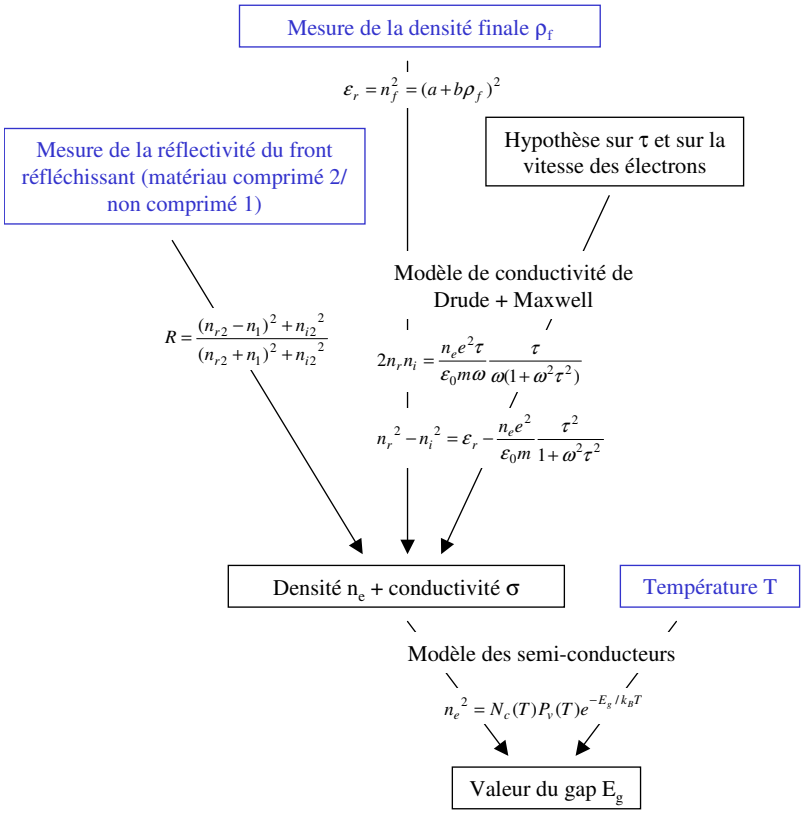


FIG. 2.8 – Récapitulatif pour relier la réflectivité au gap. Les cadres bleus sont les mesures expérimentales

Troisième partie

Mise en place expérimentale

Chapitre 3

Chocs laser dans des cibles pré-comprimées

Sommaire

3.1 Principe du couplage statique-dynamique 55
3.1.1 Approche statique 55
3.1.2 Approche dynamique 56
3.1.3 Couplage statique dynamique 57
3.2 Mesures absolues et mesures relatives 58
3.2.1 Mesures absolues 58
3.2.2 Mesures relatives : méthode de désadaptation d'impédance 59
3.2.3 Principe d'une cible pour choc laser 62
3.3 La cible pré-comprimée 63
3.3.1 Schéma d'une cible 63
3.3.2 Caractérisation de la cible 63

Après avoir vu pendant 2 chapitres, le comportement théorique de la matière sous choc, nous allons passer maintenant à l'aspect expérimental.

3.1 Principe du couplage statique-dynamique

3.1.1 Approche statique

Le principe des méthodes statiques est de comprimer le volume expérimental entre deux enclumes, les parois latérales étant faites par un joint métallique. Cette méthode a évolué progressivement au cours du temps grâce à l'utilisation de matériaux de plus en plus durs. P. W. Brigman fut le pionnier dans ce domaine et obtint le prix Nobel en 1946. Il avait pu alors atteindre 10 GPa avec des enclumes en carbure de tungstène. Lawson et Tang [2] furent les premiers à utiliser des enclumes en diamant. Cette évolution permit non seulement de repousser les limites des pressions atteintes, mais aussi les techniques d'analyse car le diamant étant transparent, toutes les techniques de spectroscopie et de diffraction X pouvaient maintenant être utilisées.

Le principe d'une cellule à enclume diamant est très simple et est présenté figure 3.1. Un diamant reste fixe tandis que l'autre, mobile, est mis en mouvement par l'intermédiaire d'un piston subissant des

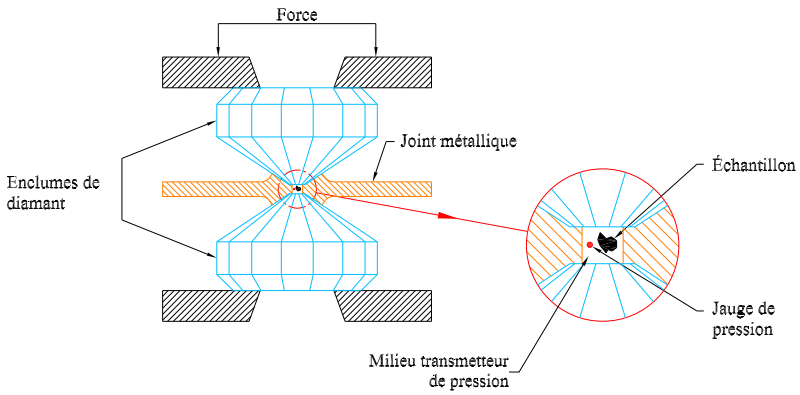


FIG. 3.1 – Principe de la cellule à enclume diamant

forces extérieures. Lorsque le joint est comprimé par les deux diamants, de très hautes pressions sont générées dans le trou central dans lequel on a placé l'échantillon. Cet échantillon peut soit remplir tout l'espace, soit être entouré d'un milieu transmetteur de pression, souvent de l'hélium pour ses propriétés hydrostatiques.

3.1.2 Approche dynamique

Le principe de l'approche dynamique est de générer une onde de choc dans un échantillon le portant ainsi, pendant un court instant (quelques nanosecondes), à des pressions très élevées. Au contraire de l'approche statique, l'onde de choc n'augmente pas seulement la pression, mais elle augmente aussi la température. On passe donc très rapidement d'un milieu solide ou gazeux froid à un milieu très dense et très chaud. Les pressions atteintes peuvent alors être très grandes, mais l'augmentation importante de la température limite le facteur de compression à 4 quel que soit le matériau étudié. L'ensemble des points atteints par cette méthode sont situés sur la courbe de Rankine Hugoniot, courbe unique déterminée pour une densité initiale de l'échantillon.

Les principaux dispositifs utilisés à l'heure actuelle pour générer des ondes de choc sont entre autres les canons à gaz, les machines Z pinch et les lasers. Quelques explosions nucléaires ont été instrumentées pour ces mesures. Le domaine extrême alors obtenu peut maintenant être couvert par l'utilisation des lasers kJ. La figure 3.2 présente une illustration de ces 4 systèmes.

Le principe du canon à gaz est de mettre en mouvement par l'explosion d'un gaz un projectile qui va percuter l'échantillon provocant ainsi l'apparition d'une onde de choc. Les pressions atteintes avec ce système pour l'hydrogène par exemple sont de l'ordre de 300-400 kbar pour des températures de quelques milliers de degrés .

Les machines Z pinch fonctionnent de manière différente. On dispose autour de l'axe z un réseau de fils dans lequel on fait passer un courant très intense pendant une courte durée. Au passage du courant, les fils sont vaporisés et grâce au champ magnétique B produit par le passage de ce même courant, le plasma crée est comprimé le long de l'axe z . Ce plasma très chaud émet des rayons X qui vont comprimer à leur tour l'échantillon placé au centre. On peut alors atteindre des pressions de l'ordre du Mbar et des températures de plusieurs eV.

L'explosion nucléaire est la méthode qui permet d'atteindre les pressions et les températures les plus élevées. L'explosif est en contact avec un métal dans lequel l'onde de choc est générée puis transmise à l'échantillon à étudier. Les pressions sont alors de l'ordre de la dizaine de Mbar. Cette méthode est très similaire aux explosions chimiques. Seule l'intensité de l'explosion change.

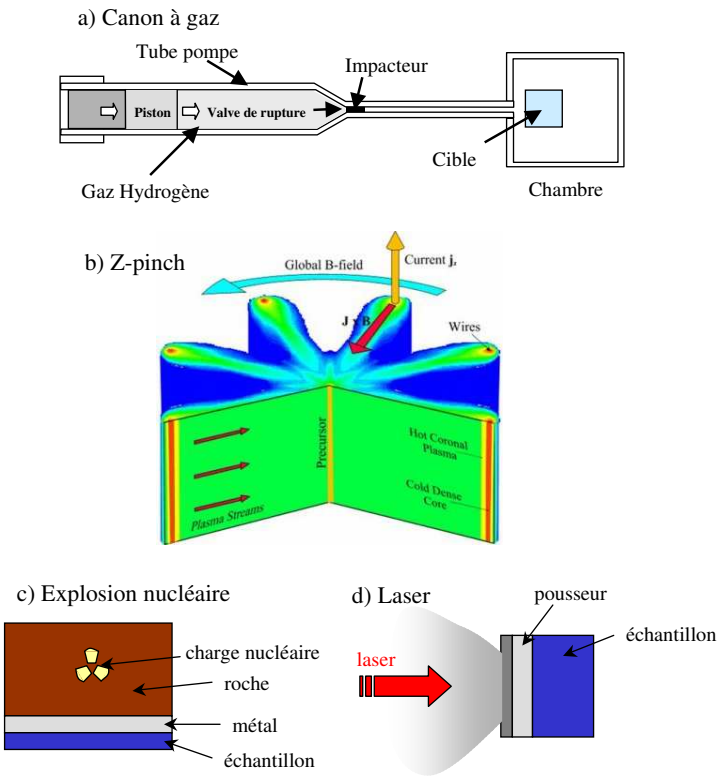


FIG. 3.2 – Différentes dispositifs pour générer des hautes pressions par des ondes de choc. a) Canon à gaz. b) Z-striction (Z-pinch). c) Explosion nucléaire. d) Laser

La méthode laser est encore différente. Le laser est focalisé sur un matériau qui est alors chauffé entraînant la formation d'un plasma. Ce plasma se détend vers l'arrière et par effet fusée pousse et crée une onde de choc dans l'échantillon.

3.1.3 Couplage statique dynamique

La figure 3.3 récapitule l'ensemble des domaines pouvant être atteints par les méthodes statiques et les méthodes dynamiques pour l'hydrogène. La pression atteinte par la méthode statique comme nous l'avons dit précédemment est limitée par les matériaux utilisés. Cela correspond par exemple pour H_2 à un domaine allant de 0 à 3 Mbar. Cette méthode peut être couplée à un chauffage résistif ou laser permettant alors d'agrandir le domaine exploré. L'approche dynamique, elle, permet d'atteindre des domaines plus denses et plus chauds, mais elle est limitée car les points obtenus sont situés sur une courbe unique, la courbe d'Hugoniot. Cependant cette courbe est déterminée par la densité et la pression initiale de l'échantillon. On peut donc imaginer, en changeant l'état initial, c'est à dire en précomprimant l'échantillon par des méthodes statiques, générer des Hugoniots secondaires et atteindre ainsi tout un nouveau domaine très dense et moins chaud que l'Hugoniot principale. Ce domaine est représenté en rouge hachuré sur la figure 3.3 pour une précompression de 20GPa. Les facteurs de compression des méthodes statique et dynamique sont alors multipliés entre eux. Le tableau 3.1 illustre cela avec plusieurs exemples. Il faut donc pour coupler ces deux méthodes générer un choc laser dans une cellule à enclumes diamant.

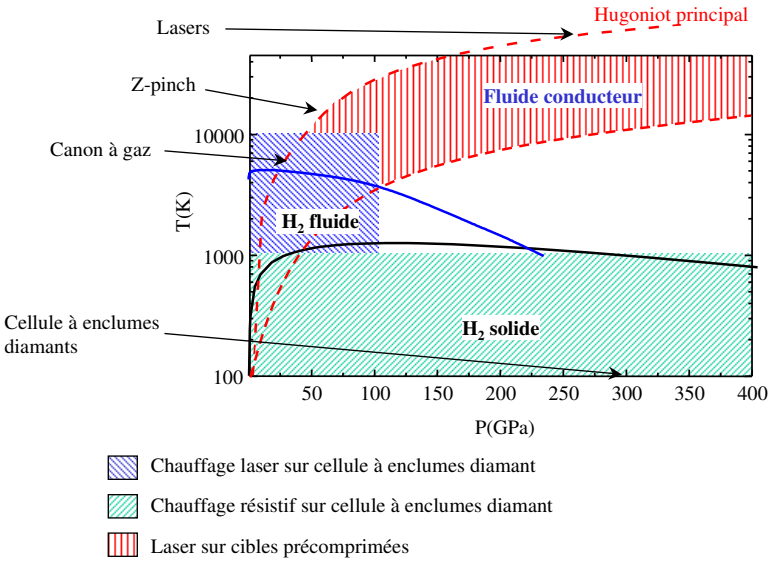


FIG. 3.3 – Domaines atteints par les méthodes statiques et dynamiques

élements	H_2	He	H_2O	LiH
compression statique à 20 GPa	7	6.5	2.7	2
compression dynamique* et statique	28	26	11	8

* = facteur de compression limite 4

TAB. 3.1 – Multiplication des facteurs de compression

CQFR : Coupler une approche statique (presse à enclumes diamant) et une approche dynamique (génération d'une onde choc) permet de multiplier les facteurs de compression atteints dans chacun des domaines.

3.2 Mesures absolues et mesures relatives

Les états décrits lors de la propagation d'un choc dans la matière sont définis par les relations de Rankine-Hugoniot. Ces équations relient entre elles 5 grandeurs : la pression, la densité, l'énergie, la vitesse de choc et la vitesse particulaire. Elles forment ensemble un système de 3 équations à 5 inconnues. Il est donc nécessaire de mesurer 2 de ces grandeurs pour déterminer toutes les variables. Ces deux paramètres sont en général la vitesse de choc Us et la vitesse matérielle Up. Deux méthodes sont alors possibles : les mesures absolues et les mesures relatives.

3.2.1 Mesures absolues

Le but des mesures absolues est de mesurer simultanément Us et Up dans le matériau étudié. Cela peut être réalisé de plusieurs manières.

3.2.1.1 Radiographie transverse

La technique de radiographie transverse, comme utilisée par l'équipe de G. Collins, a permis de déterminer l'équation d'état du deuterium [27]. Un choc est généré dans l'échantillon par l'intermédiaire

d'un pousseur qui dans ce cas était du Be. Une onde de choc est générée dans le D_2 et se propage. L'échantillon est alors éclairé de manière transverse avec des rayons X et le rayonnement transmis est collecté par une caméra streak situé de l'autre côté. Par différence de contraste due aux différences de densités entre les parties choquées et non choquées, on peut suivre l'évolution du choc (figure 3.4).

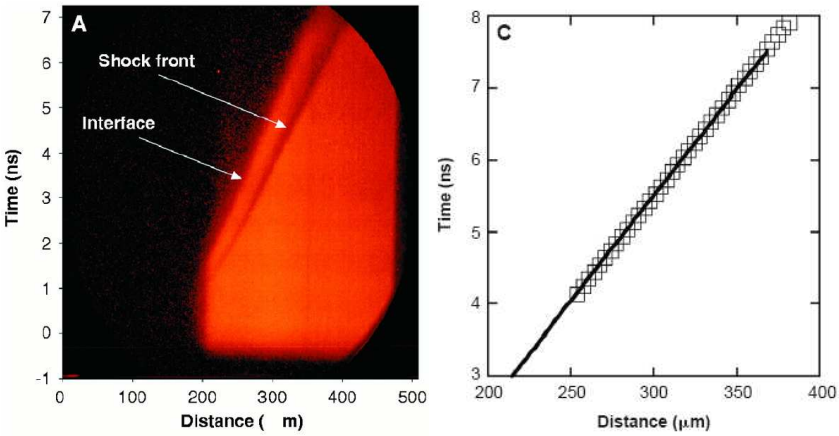


FIG. 3.4 – Mesure absolue par radiographie transverse : l'image de gauche représente l'image obtenue par transmission d'un rayonnement X et l'image de droite est la comparaison entre les points obtenus par radiographie transverse (carrés) et le résultat obtenu par mesure interférométrique (droite)

La pente de la droite au niveau de l'interface donne alors la vitesse du pousseur, c'est à dire la vitesse matérielle Up et la pente du front de choc nous donne la vitesse Us. Us et Up sont ainsi mesurées simultanément . La vitesse Us est aussi mesurée en face arrière par mesure interférométrique. Cela permet d'avoir une confirmation de la vitesse mesurée de manière transverse.

3.2.1.2 Mesures avec marches

Un exemple de mesures avec marches a été réalisé par Benuzzi et al. [28] (figure 3.5). Le principe de ces mesures est de mesurer par mesures interférométriques le temps de transit du choc dans une marche dont on connaît l'épaisseur obtenant ainsi la vitesse de choc et ensuite de mesurer la vitesse de surface libre (vitesse matérielle d'un matériau se détendant dans le vide). Cette vitesse de surface libre V peut être ramenée moyennant certaines approximations à la vitesse matérielle Up du choc par la relation :

$$V \simeq 2Up \tag{3.1}$$

Ces mesures absolues sont très pratiques car elles ne font intervenir qu'un seul matériau, le matériau étudié. Elles sont cependant difficiles à mettre en oeuvre. Par exemple pour la radiographie il faut pouvoir visualiser l'échantillon de manière transverse ce qui n'est pas toujours évident pour des cibles complexes. De la même manière, cette mesure avec marche et détermination de la vitesse de surface libre est très bien adaptée à des métaux mais ne pourra pas être mise en place facilement pour des gaz. Pour contourner ces difficultés, une autre méthode de mesure a été développée : les mesures relatives.

3.2.2 Mesures relatives : méthode de désadaptation d'impédance

Au lieu de mesurer simultanément la vitesse de choc et la vitesse matérielle dans un même matériau, on mesure la vitesse de choc dans le matériau étudié et dans un matériau de référence. Connaissant parfaitement les propriétés du matériau de référence, on peut remonter à la vitesse matérielle dans le

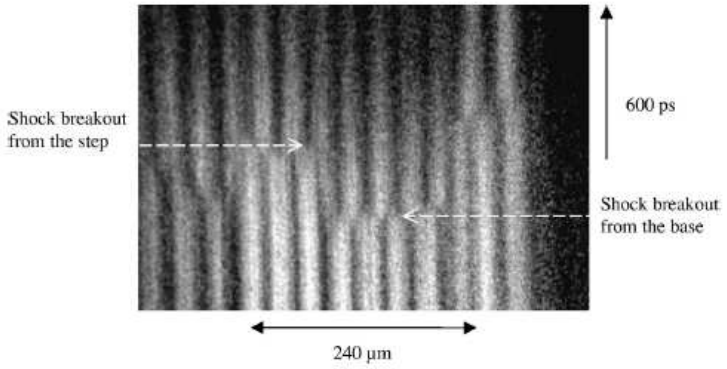


FIG. 3.5 – Mesure absolue par marche sur du fer [28] : la vitesse de choc est évaluée grâce au temps de transit du choc entre la partie basse et la partie haute de la marche. La vitesse de surface libre est déterminée grâce aux décalages des franges

matériau à étudier. Cette méthode, connue sous le nom de méthode de désadaptation d'impédance, est basée sur l'utilisation des relations de propagation d'un choc entre deux matériaux.

3.2.2.1 Propagation d'un choc entre deux milieux

On considère un matériau A connu dans lequel on génère une onde de choc qui passe dans un second matériau. Une onde de choc est alors transmise dans ce matériau et une onde est réfléchie dans le matériau A. Cette onde réfléchie, se propageant en sens inverse, peut être suivant les cas soit une onde de choc si le matériau 2 est plus " dur " (matériau C sur la figure 3.6), soit une onde de détente (ou raréfaction) si 2 est plus " mou " (matériau B sur la figure 3.6). Il y a au passage de l'onde de choc à l'interface une discontinuité dans les conditions de propagation, un nouvel état d'équilibre s'établit dans chaque milieu après la transmission. Cet équilibre hydrodynamique entraîne deux relations importantes au niveau de l'interface. Tout d'abord, les deux milieux, toujours en contact, ont des vitesses matérielles qui deviennent égales et ensuite les pressions, elles aussi, s'égalisent de part et d'autres de l'interface.

Les autres grandeurs thermodynamiques comme l'énergie interne, la température ou l'entropie peuvent subir des discontinuités sans pour autant changer l'équilibre hydrodynamique.

3.2.2.2 Méthode de désadaptation d'impédance

Utilisons maintenant ces propriétés dans le diagramme P-u (vitesse matérielle). Le matériau A, matériau de référence, étant connu, on peut tracer l'Hugoniot P_A, ensemble des points pouvant être atteints à partir du point initial P_0, ρ_0. D'après la loi de conservation de l'impulsion, la pression finale pour un choc donné va être donnée par la relation :

$$P_A = \rho_{A0} D_A u + P_0 \tag{3.2}$$

Si on arrive à mesurer la vitesse de choc D expérimentalement, on peut déterminer l'état final de choc du matériau A qui est l'intersection entre l'Hugoniot P_A et la droite $P_A = \rho_{A0} D_A u$ (si on néglige P_0). On connaît donc l'état du matériau A.

On pourrait si on connaissait l'équation d'état du matériau B faire le même raisonnement et trouver ainsi son état final. Cependant on ne connaît pas l'Hugoniot P_B, mais on sait d'après l'équilibre hydrodynamique entre les deux fluides à l'interface que le matériau A va se détendre (ou être à nouveau comprimé) dans le matériau B et P_A va être égale à P_B et u_A à u_B.

$$P_{fA} = P_{fB} \tag{3.3}$$

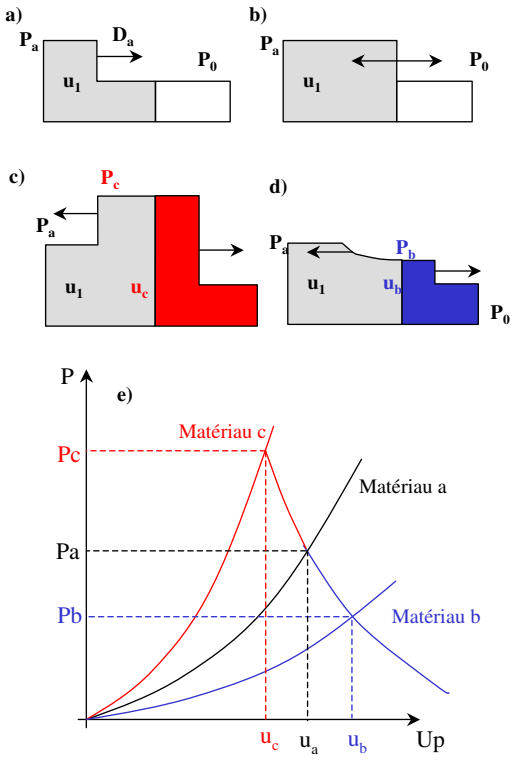


FIG. 3.6 – Transmission d'un choc entre deux matériaux : a) Un choc d'intensité P_a, u_a est généré dans le matériau a. Cela correspond à l'Hugoniot noir sur la figure e. b) Le choc se propage jusqu'à l'interface. Il y a alors création d'une onde de choc transmise et une onde réfléchie. c) Le matériau c (Hugoniot rouge sur la figure e) est plus dur que le matériau a. L'onde réfléchie est une seconde onde de choc qui porte le milieu à une pression P_c supérieur à P_a. d) Le matériau b (Hugoniot bleu sur la figure e) est plus mou que le matériau a. L'onde réfléchie est une onde de détente qui porte le milieu a à une pression P_b inférieur à P_a. e) Illustration d'une transmission de choc dans le plan P-u

$$u_A = u_B \tag{3.4}$$

On peut donc tracer l'isentrope P_s de détente de A à partir du point P_A, u_A (cas d'une onde de détente) ou une Hugoniot secondaire P_{A2} (cas d'une onde de choc) et l'état final de B devra forcément se trouver sur l'une de ces courbes. Si on arrive à mesurer la vitesse de choc de B, notée D_B, on peut tracer la droite $P_{fB} = \rho_{B0} D_B u$. L'état final de B sera alors le point d'intersection P_{fB},u_B entre l'isentrope de détente (ou l'Hugoniot secondaire) de A et cette droite (égalité des pressions et des vitesses matérielles à l'interface). On a ainsi déterminé P_{fB} et u_B pour un choc donné et on a alors suffisamment de données pour remonter à E_B et ρ_B. Cette méthode graphique,illustrée sur la figure 3.7, est simple et a été très largement employée pour déterminer de nombreuses équations d'état. C'est cette méthode qui a été choisie pour déterminer les équations d'état de H2, He et H2/He.

Bien que très simple, la méthode de désadaptation d'impédance repose sur une hypothèse importante qui est la connaissance parfaite de l'équation du matériau de référence pour pouvoir calculer son Hugoniot et son isentrope de détente.

CQFR : Il existe deux grands types de mesure : les mesures absolues pour lesquelles deux paramètres, souvent la vitesse de choc et la vitesse matérielle, sont mesurés simultanément et les mesures relatives pour lesquelles la même quantité, la vitesse de choc est mesurée dans un échantillon de référence et l'échantillon étudié.

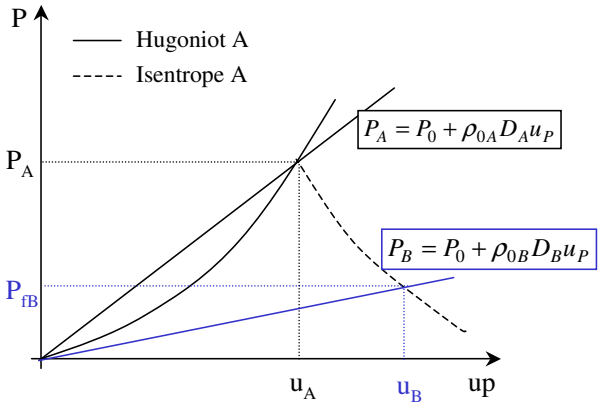


FIG. 3.7 – Méthode de désadaptation d'impédance

3.2.3 Principe d'une cible pour choc laser

La méthode choisie pour nos expériences laser est la mesure relative, plus adaptée aux cibles pré-comprimées souvent assez complexes. Une cible typique est constituée de 3 principaux éléments : l'ablateur, le matériau référence et le matériau test. L'ablateur désigne le matériau directement en contact avec le laser. Il est de préférence de Z faible pour éviter une génération importante de rayonnement x qui peuvent préchauffer l'échantillon. Il joue le rôle de piston (voir paragraphe sur l'interaction laser-matière pour plus de détails). Une onde de choc est alors générée dans le matériau de référence, puis est transmise dans le matériau à étudier. La figure 3.8 montre un exemple de cible. C'est ce type de cible qui a été utilisé pour étudier l'équation d'état du diamant.

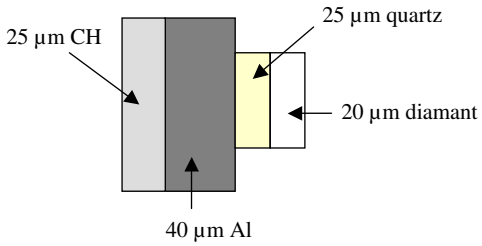


FIG. 3.8 – Cible diamant

Le plastique CH joue le rôle d'ablateur. Il est expulsé vers l'arrière entraînant la formation d'une onde de choc dans l'aluminium. L'aluminium n'est en principe pas nécessaire. Son rôle ici est de bloquer les rayons x éventuellement produits dans le plastique pour éviter un préchauffage de la cible. Plus il va être épais, plus le préchauffage sera réduit, mais plus le choc sera atténué avant d'arriver dans le matériau de référence. Il faut donc trouver un compromis entre les deux. Le choc est ensuite transmis dans le quartz, matériau de référence qui le transmet ensuite dans le diamant.

CQFR : Une cible laser, adaptée pour les mesures relatives, est constituée d'un ablateur qui interagit avec le laser et joue le rôle de piston, d'un matériau de référence et du matériau étudié.

3.3 La cible pré-comprimée

3.3.1 Schéma d'une cible

Une cellule à enclumes de diamant est normalement constituée comme nous l'avons vu précédemment de deux diamants qui permettent de contenir l'échantillon et de le maintenir à une pression donnée. Cependant un tel système n'est pas adapté pour les expériences laser car les diamants ayant une épaisseur importante (1.2 mm), il faudrait une trop grande énergie laser pour traverser le premier diamant et créer une onde de choc dans l'échantillon. Un nouveau système a alors été mis au point [3]. Le premier diamant (côté laser) est remplacé par une fenêtre en diamant d'une épaisseur allant de 100 à 500 microns selon la précompression souhaitée. Le choc généré arrive alors dans l'échantillon avec une intensité suffisante pour le porter dans un état dense et chaud. Une vue en 3 dimensions d'une telle cible est présentée sur la figure 3.9a.

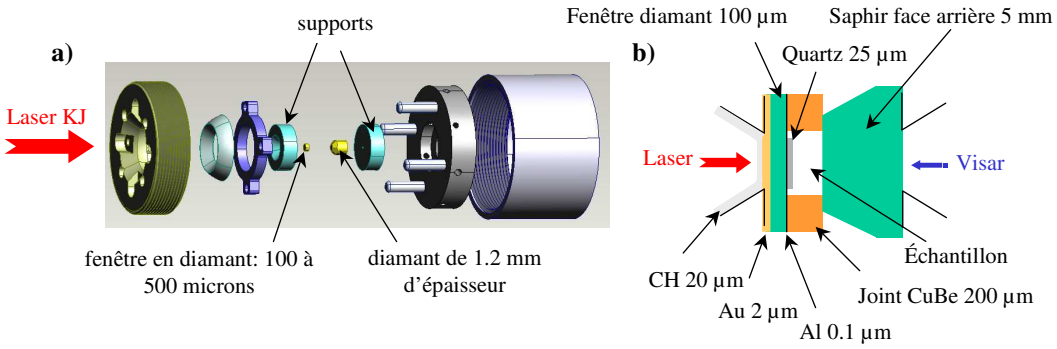


FIG. 3.9 – Vue 3D d'une cellule cible

La figure 3.9b présente le schéma plus détaillé d'une cellule. Le diamant coté VISAR est remplacé par un saphir. En effet le saphir est moins sensible aux électrons rapides parfois générés dans la fenêtre de diamant et permet donc d'éviter une perte de contraste dans l'image VISAR. La fenêtre en diamant est recouverte de plusieurs couches différentes. Le plastique, situé sur la fenêtre mais aussi sur les bords du support, a un double rôle. Il permet en premier lieu d'éviter une interaction directe entre le support en carbure de tungstène CW et le laser et ensuite, de par sa position, il joue le rôle d'ablateur. L'interaction du laser avec des matériaux de Z élevés comme le CW est en effet à éviter car cela génère de nombreux rayons X qui peuvent ensuite préchauffer l'échantillon. Cet effet parasite n'étant pas forcément bien contrôlé malgré la présence du plastique, une couche d'or de 1 à 2 μm est ajoutée sur la fenêtre en diamant. Les rayons X éventuellement générés sont alors arrêtés. De l'autre côté de la fenêtre en diamant est déposée une couche en aluminium de 0.1μm. Cette couche permet de visualiser grâce à l'image VISAR le débouché de choc dans le quartz. Le rôle du quartz, matériau de référence, va être détaillé dans les paragraphes suivants.

La cellule étant complètement fermée, toutes les mesures se font à travers le saphir. Pour éviter toutes les réflexions parasites du laser sonde sur les faces d'entrée et de sortie, chaque saphir utilisé subit un traitement anti-reflet à ω et à 2ω.

3.3.2 Caractérisation de la cible

3.3.2.1 Mesure de la pression initiale

Comme nous l'avons vu, les courbes de Rankine-Hugoniot sont déterminées par la densité initial ρ_0 et la pression initiale de l'échantillon P_0. De par la géométrie de la cellule à enclumes de diamant des

systèmes piézoélectriques classiques de mesure de pression ne peuvent pas être utilisés et sont remplacés par des systèmes optiques. Ces jauges optiques sont basées sur la mesure du déplacement des raies du spectre de luminescence d'un matériau placé à l'intérieur de la cellule.

En physique des hautes pressions, la jauge de luminescence très utilisée dans les presses à enclumes de diamant est le rubis Al_2O_3 :Cr^{3+} [29, 30]. Il possède 2 raies très intenses autour de 696 nm (figure 3.10). Le rubis est excité par un laser et le spectre émis est collecté par un spectroscope. On calcule alors le déplacement des raies et on obtient une mesure de la pression. Placé à l'intérieur de la cellule, le rubis constitue une jauge de pression in-situ.

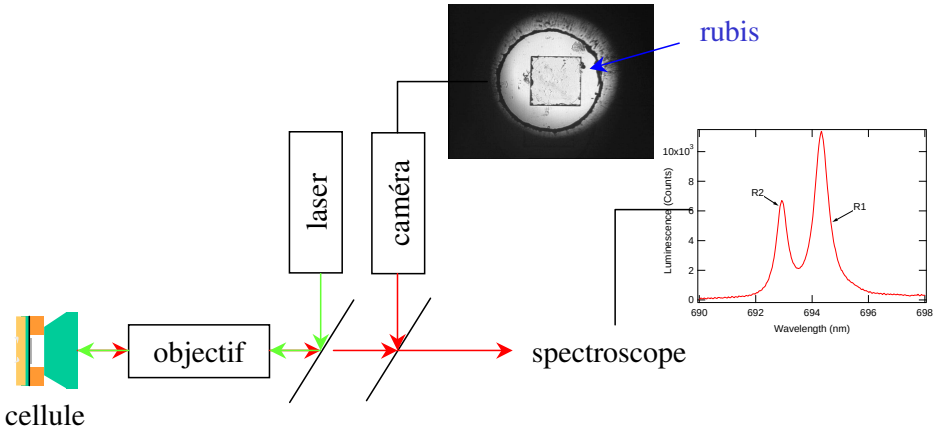


FIG. 3.10 – Montage de mesure de pression

La loi générale donnant la pression P est :

$$P = \frac{0.274 \times \lambda_{R_1}(0)}{B} \left[(\frac{\lambda_{R_1}(P)}{\lambda_{R_1}(0)})^B - 1 \right] \tag{3.5}$$

où P est en GPa, λ_{R_1}(P) et λ_{R_1}(0) sont les longueurs d'onde de la raie R_1 à P et P=0 respectivement et B=7.665 (paramètre dépendant de l'hydrostaticité du milieu). Les échantillons fluides sont hydrostatiques. La longueur d'onde de la raie varie également avec la température [31] et est linéaire jusqu'à 600K (7.3 x $10^{-3}\pm10^{-4}$nm/K).

La première procédure mise en place pour mesurer la pression consistait à mesurer la référence du rubis utilisé λ_{rubis_1}(0) et ensuite d'utiliser cette référence pour évaluer la pression finale à partir de λ_{rubis_1}(P). Cependant la température pouvant varier de plusieurs degrés d'un jour à l'autre, les conditions de mesure de λ_{rubis_1}(0) et λ_{rubis_1}(P) n'étaient pas forcément les mêmes. On pouvait ainsi observer des écarts allant jusqu'à 0.5 kbar d'une mesure à l'autre suivant les jours.

Une seconde procédure a alors été établie. Pour éviter les fluctuations de températures, plusieurs rubis ont été mis de côté. Ils ont été placés dans de la graisse à vide pour reproduire au mieux les conditions dans la cellule. Étant constamment à la même température que la cellule, ces rubis servent alors à déterminer la référence $\lambda_{rubisref}$(0) dans les conditions de l'expérience. La référence est donc faite sur un rubis différent de celui de la cellule mais dans des conditions identiques. On peut alors déterminer la pression à 0.2 kbar près.

3.3.2.2 Mesure de l'épaisseur de l'échantillon

Avant chaque tir, l'épaisseur du quartz et celle de l'échantillon sont mesurées par interférométrie. Cette donnée permet ensuite de calculer grâce à la mesure du temps de transit la vitesse moyenne du choc et ainsi vérifier la cohérence avec les vitesses mesurées par VISAR (diagnostic interférométrique dont le fonctionnement est expliqué au chapitre suivant). La figure 3.11 présente l'épaisseur de l'échantillon et du quartz pour différentes pressions. On peut voir que l'épaisseur du quartz varie entre 25 et 30 microns (dispersion des plaques de quartz). L'épaisseur du joint métallique des cibles diminue continûment avec la pression dans l'échantillon.

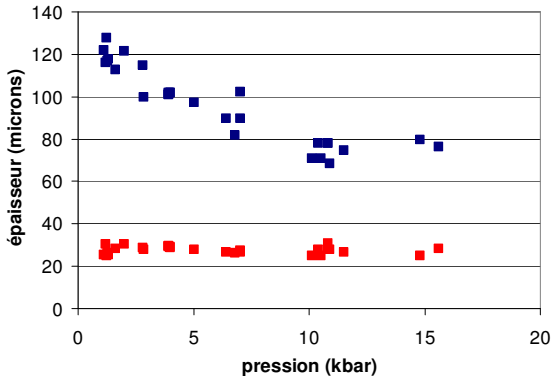


FIG. 3.11 – Mesure de l'épaisseur du quartz (points rouges) et de l'échantillon (points bleus)

CQFR : La cellule à enclume diamant classique a été adaptée aux chocs laser. Pour permettre la génération d'un choc suffisamment plan, un des deux diamants est remplacé par une fenêtre diamant dont l'épaisseur varie de 100 à 500 microns selon la précompression souhaitée. La pression initiale est déterminée avant chaque tir à 0.2kbar près et les épaisseurs du quartz et de l'échantillon sont mesurées par interférométrie.

Chapitre 4

Mesures des vitesses de choc : technique VISAR

Sommaire

4.1 VISAR **67**
4.1.1 Interféromètre de Mach Zender 68
4.1.2 Retard introduit par l'étalon 69
4.1.3 Calcul lorsque la cible est immobile 71
4.1.4 Calcul lorsque la cible est animée d'une vitesse v(t) 71
4.1.5 Sensibilité des visars 74
4.1.6 Influence de la réflectivité de la surface en mouvement 75
4.1.7 Nature de l'interface réfléchissante 76
4.2 Traitement des données **77**
4.2.1 Données VISAR 77
4.2.2 Traitement de l'image 78
4.2.3 Extraction de l'information 82
4.2.4 Précision atteinte 83

4.1 VISAR

Un VISAR (Velocity Interferometer System for Any Reflector) [32, 33, 34] est un diagnostic interférométrique qui permet de mesurer l'effet Doppler observé lorsqu'une lumière est réfléchie sur une surface en mouvement. Grâce à l'effet Doppler, on remonte ensuite à la vitesse de la surface réfléchissante.

Dans un interféromètre classique, les interférences proviennent de l'interaction de deux ondes de même longueur d'ondes mais avec des chemins optiques différents. Le VISAR, lui, est constitué d'un interféromètre classique auquel un retard a été introduit dans l'un des deux bras. Une onde de longueur d'onde λ va interagir avec une onde de longueur d'onde $\lambda + \Delta\lambda$ due à l'effet Doppler. Cela va se traduire comme nous allons le montrer par un décalage des franges proportionnel à la vitesse de la surface réfléchissante.

4.1.1 Interféromètre de Mach Zender

Le schéma d'un interféromètre de Mach Zender est présenté figure 4.1 .

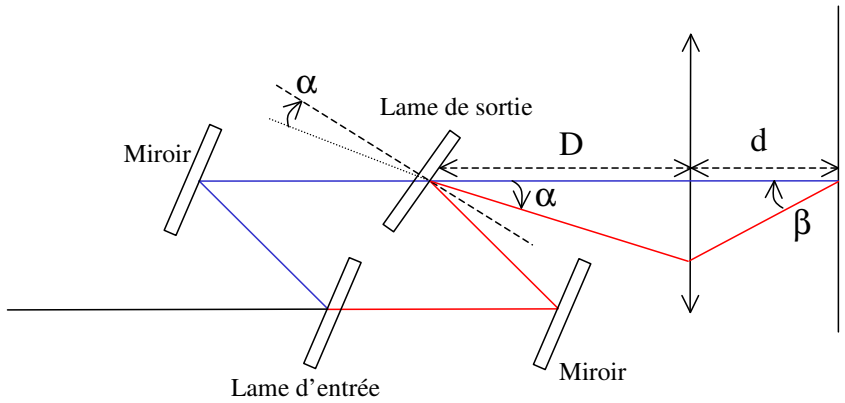


FIG. 4.1 – Interféromètre de Mach-Zender

Le faisceau incident est divisé en deux bras par la lame séparatrice d'entrée. Chaque faisceau secondaire va se réfléchir sur un miroir et les deux faisceaux se recombinent ensuite au niveau de la lame de sortie légèrement inclinée d'un angle α. Sur cette lame, chaque faisceau a parcouru la même distance, les chemins optiques sont identiques. Lorsque le bras 2 (rouge sur la figure 4.1) repart de la lame de sortie, il repart avec un angle α vers une lentille qui, placée derrière le dispositif, permet de recombiner les deux faisceaux. Il va alors se former des franges horizontales d'interfrange $i = \frac{\lambda}{sin\beta}$ où β représente l'angle avec lequel les deux faisceaux se recombinent sur l'écran (figure 4.1). Dans l'approximation de l'optique géométrique, on peut approximer i à $i = \frac{\lambda d}{D\alpha}$. L'interfrange dépend de la longueur d'onde du laser incident.

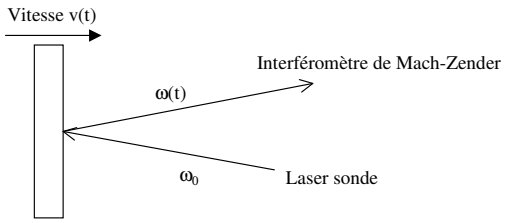


FIG. 4.2 – Réflection du laser sur une surface en mouvement

Si avant d'entrer dans l'interféromètre, on fait réfléchir le laser sur une surface réfléchissante en mouvement comme illustré sur la figure 4.2, la longueur d'onde entrant dans l'interféromètre va par effet Doppler être différente entre deux instants donnés. Le changement de fréquence ou pulsation est donné par :

$$\omega(t) = \omega_0 \frac{1 + v(t)/c}{1 - v(t)/c} \tag{4.1}$$

où v est la vitesse de la surface réfléchissante, c la vitesse de la lumière et ω_0 la pulsation incidente.

Imaginons que la surface réfléchissante passe instantanément de 0 à V. L'interfrange va donc passer de $i = \frac{\lambda}{sin\beta}$ à $i' = \frac{\lambda'}{sin\beta}$ avec$\lambda' = \frac{2\pi c}{\omega'}$

Comme V«c, on trouve :

$$\Delta i = \Delta\lambda \simeq -2\lambda_0 \frac{V}{c} \tag{4.2}$$

Ce changement dans l'interfrange n'est pas détectable de manière simple. La résolution des appareils n'est pas suffisante. Pour des vitesses de l'ordre de 10 km/s et $\lambda_0 = 532nm$, on a $\Delta\lambda \simeq 0.018nm$.

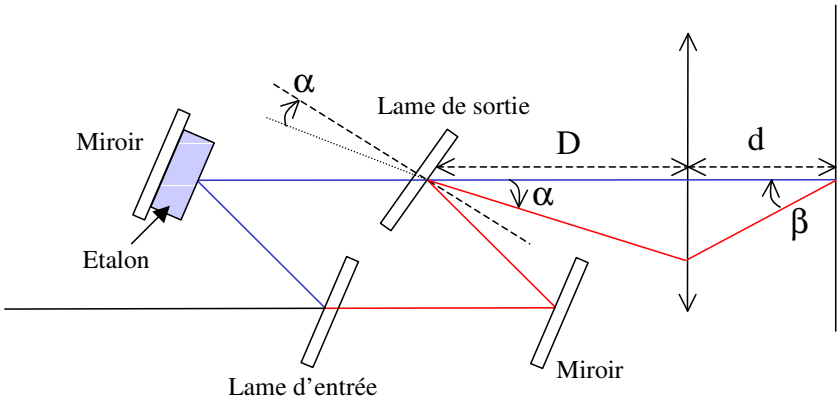


FIG. 4.3 – Interféromètre de Mach-Zender avec étalon

Pour rendre détectable le changement de longueur d'onde et ainsi de pouvoir mesurer la vitesse de la surface réfléchissante qui est le but en soit du diagnostic, un retard est introduit dans l'un des deux bras de l'interféromètre (figure 4.3). Ce n'est donc plus deux ondes de longueur d'onde λ qui vont interférer, mais une onde à λ avec une autre à $\lambda + \Delta\lambda$. Cela va se manifester au niveau de la figure d'interférence par un décalage des franges qui lui pourra être mesuré.

4.1.2 Retard introduit par l'étalon

On considère un étalon placé devant le miroir du bras 1. Ce miroir est décalé d'une distance d_1 pour que les rayons qui proviennent du miroir 1 se recombinent avec les rayons du bras 2 toujours au même endroit lorsqu'ils arrivent au niveau de la lame de sortie qu'il y ait un étalon ou pas (figure 4.4).

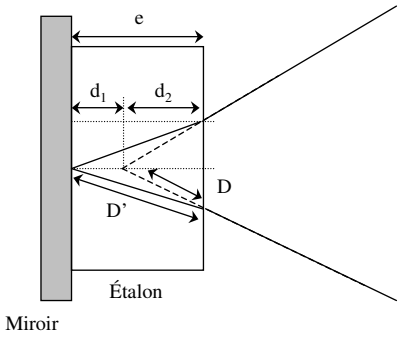


FIG. 4.4 – Chemin des rayons dans l'étalon

Si il n'y avait pas d'étalon, le rayon 1 parcourait une distance 2D dans l'air. En présence de l'étalon, cette distance devient 2nD'. Le retard introduit est donc égal à :

$$\tau = \frac{2nD' - 2D}{c} \simeq \frac{2ne - 2d_2}{c} \tag{4.3}$$

si on se place dans l'approximation des petits angles. Toujours en restant dans cette approximation, on peut montrer que :

$$d_2 \simeq \frac{e}{n} \tag{4.4}$$

ce qui entraîne :

$$\tau \simeq \frac{2e}{c}(n - 1/n) \tag{4.5}$$

Cependant, il ne faut pas oublier que l'indice de l'étalon change légèrement en fonction de la longueur d'onde [35]. Pour des vitesses de l'ordre du km/s, le changement de longueur d'onde est relativement petit et on peut considérer que l'indice de refraction varie de manière linéaire avec la longueur d'onde.

$$n(\lambda) = n_0 + \left(\frac{dn}{d\lambda}\right)_{\lambda_0} (\lambda(t) - \lambda_0) \tag{4.6}$$

Il vient alors au premier ordre en v/c :

$$\tau \simeq \frac{2e}{c}\left(n_0 + \left(\frac{dn}{d\lambda}\right)_{\lambda_0} (\lambda(t) - \lambda_0) - 1/n_0\right) \tag{4.7}$$

ce qui donne d'après 4.2

$$\tau \simeq \frac{2e}{c}\left(n_0 + \left(\frac{dn}{d\lambda}\right)_{\lambda_0} \left(-2\lambda_0 \frac{v(t)}{c}\right) - 1/n_0\right) \tag{4.8}$$

En gardant la notation introduite par Barker's δ, on obtient :

$$\tau \simeq \tau_0 + 2\tau_0 \frac{v(t)}{c}\delta \tag{4.9}$$

avec

$$\delta = -\frac{\lambda_0 n_0}{n_0^2 - 1}\left(\frac{dn}{d\lambda}\right)_{\lambda_0} \tag{4.10}$$

et

$$\tau_0 = \frac{2e}{c}(n_0 - 1/n_0) \tag{4.11}$$

Pour un étalon en quartz et $\lambda_0 = 532nm$, $n_0 = 1.4609$ et $\frac{dn}{d\lambda} = -4.610^{-5} nm^{-1}$, on a $\delta = 3.15\%$.

CQFR : Un VISAR est un interféromètre de Mach-Zender auquel un retard a été introduit dans l'un des bras. Ce retard est introduit grâce à l'ajout d'un étalon sur l'axe de l'un des bras. Ainsi lors de la mise en mouvement de la surface réfléchissante, par effet Doppler et de par la présence de l'étalon, une onde de longueur d'onde λ va interagir avec une onde de longueur d'onde $\lambda + \Delta\lambda$ qui n'aura pas parcouru le même chemin. Cela va entraîner un saut de frange mesurable qui pourra être ensuite relié directement à la vitesse de la surface réfléchissante.

4.1.3 Calcul lorsque la cible est immobile

Voyons d'abord le résultat obtenu lorsque la cible est immobile. Le bras 1 (bleu figure 4.3), qui a un retard τ, interagit donc avec le bras 2 (rouge figure 4.3). Si on écrit, les champs pour chaque bras, on a :

$$\Psi_1 = \frac{A}{2} cos(\omega(t-\tau) - kx) \tag{4.12}$$

$$\Psi_2 = \frac{A}{2} cos(\omega t - k_x x - k_y y) \tag{4.13}$$

avec $k_x = kcos\beta$ et $k_y = ksin\beta$. L'intensité lumineuse en x=0 s'écrit :

$$I(x=0,y,t) = \|\Psi_1 + \Psi_2\|^2 = \frac{A^2}{4}\left(1 + cos\left(\omega\tau - \frac{2\pi}{\lambda} sin(\beta) y\right)\right) \tag{4.14}$$

On obtient donc des franges verticales, séparées en y par $i = \lambda / sin\beta$.

CQFR : Lorsque la cible est immobile, on observe des franges verticales.

4.1.4 Calcul lorsque la cible est animée d'une vitesse v(t)

Lorsque la surface réfléchissante est en mouvement, la longueur d'onde n'est pas la même avant et après réflexion. On ne peut donc pas de manière simple exprimer la phase car la pulsation ω varie en fonction du temps. Nous allons donc pour exprimer ce déphasage suivre le calcul de Goosman [36] basé sur la propagation des crêtes de l'onde. On va considérer une crête au cours du temps et la suivre le long du trajet. Le chemin est représenté sur la figure 4.5.

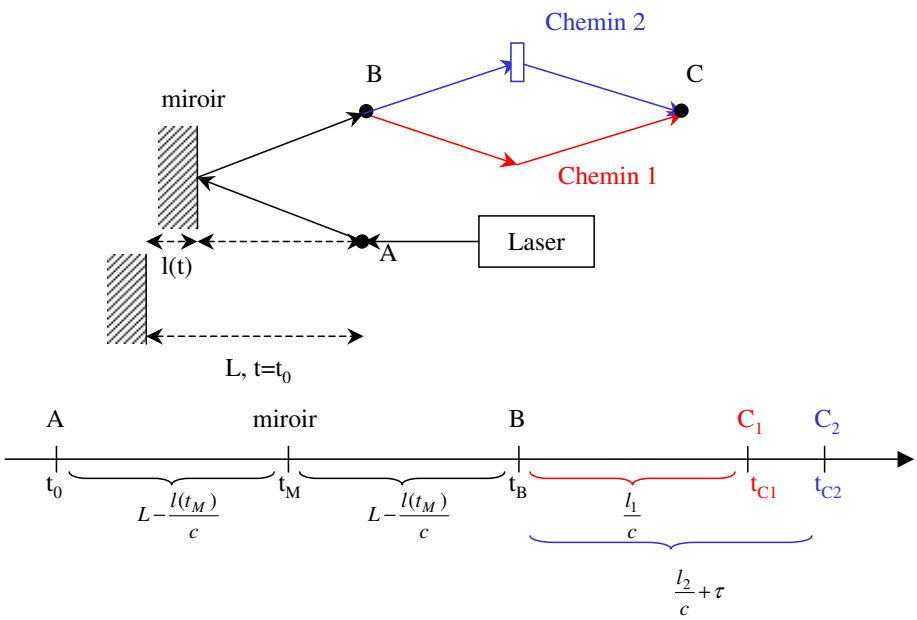


FIG. 4.5 – Chemin parcouru par les rayons lorsque la surface est en mouvement

L est la distance initiale entre le point A et le miroir. A un temps t quelconque, le miroir aura avancé d'une distance l(t). L'onde quitte le point A au temps t_0.

$$\psi_A(t_0) = Acos(\phi_0 + \omega_0 t_0) \tag{4.15}$$

où A est l'amplitude initiale de l'onde. Elle atteint le miroir au temps $t_M = t_0 + (L - l(t_M))/c$ et arrive au point B au temps $t_B = t_0 + 2(L - l(t_M))/c + \tau_M$. τ_M est le déphasage introduit lors de la réflexion sur le miroir. L'information porté par la phase au point A est la même au point B. On a alors si on ne tient pas compte du coefficient de réflexion :

$$\psi_B(t_B) = \psi_B\left(t_M + \frac{L - l(t_M)}{c} + \tau_M\right) = \psi_A(t_0) = Acos\left(\phi_0 + \omega_0\left(t_M + \frac{l(t_M) - L}{c}\right)\right) \tag{4.16}$$

τ_M est négligeable [36] et on n'en tiendra pas compte pour la suite. Introduisons une nouvelle variable t telle que $t = t_M - l(t_M)/c$.

Avant d'aller plus loin nous allons faire un petit écart et nous intéresser de plus près à la phase de l'onde en B. Avec la nouvelle variable t, on peut réécrire la phase de l'onde au point B.

$$\varphi_B(t_B) = \varphi_B(t + L/c) = \phi_0 + \frac{L\omega_0}{c} + \omega_0\left(t + \frac{2l(t_M)}{c}\right) \tag{4.17}$$

En partant de la définition de $t = t_M - l(t_M)/c$, on peut écrire :

$$\frac{dt}{dt_M} = 1 - v(t_M)/c \tag{4.18}$$

$$\frac{\varphi_B(t + L/c)}{dt} = \omega_0\left(1 + \frac{2}{c}\frac{dl(t_M)}{dt}\right) \tag{4.19}$$

ce qui donne :

$$\frac{d\varphi_B(t + L/c)}{dt} = \omega_0\left(1 + \frac{2}{c(1 - v(t_M)/c)}\frac{dl(t_M)}{dt_M}\right) = \omega_0\frac{1 + v(t_M)/c}{1 - v(t_M)/c} = \omega(t_M) \tag{4.20}$$

On peut donc écrire :

$$\varphi_B(t + L/c) = \phi_0 + \frac{L\omega_0}{c} + \int_0^t \omega(t'_M)dt' \tag{4.21}$$

avec $t' = t'_M - l(t'_M)/c$

Cette forme pour $\varphi_B(t + L/c)$ permet de mettre en avant le fait que le taux de changement de la phase au point B et au temps $t + L/c$ est égal à la fréquence Doppler d'un faisceau qui aurait quitté la surface mobile au temps t_M.

Revenons à la propagation des ondes. De la même manière que l'onde s'est propagée de A à B, arrivée en B, elle se sépare et arrive en C. L'information portée par l'onde au temps $t_{C_1} = t + L/c + l_1/c$ passée par le chemin 1 est la même que celle portée par l'onde au temps $t_{C_2} = t + L/c + l_2/c + \tau$ passée par le chemin 2, elle même égale à celle portée au temps $t_B = t + L/c$ en B. τ est le retard introduit par l'étalon et défini par 4.9. Il faut juste prendre en compte que l'onde s'est divisée en B et donc que les amplitudes seront divisées par 2. Cela revient à écrire :

$$\frac{\psi_B(t + L/c)}{2} = \psi_1^C(t_{C_1}) = \psi_2^C(t_{C_2}) \tag{4.22}$$

En utilisant 4.17 et 4.9, il vient :

$$\begin{aligned}\psi_1^C(t+L/c+l_1/c) &= \psi_2^C\left(t+L/c+l_2/c+\tau_0+2\tau_0\tfrac{v(t_M)}{c}\delta\right)\\ &= 0.5cos\left(\phi_0+\frac{L\omega_0}{c}+\omega_0\left(t+\frac{2l(t_M)}{c}\right)\right)\end{aligned} \tag{4.23}$$

On a donc trouvé une expression pour une onde passant par le chemin 1 et une passant par le chemin 2. Cependant, pour pouvoir les additionner, il faut les évaluer au même temps $t+L/c+l_1/c$.

On peut par un simple changement de variable éliminer τ_0 et en considérant que $l_1 = l_2$. On obtient alors :

$$\psi_2^C\left(t+L/c+l_1/c+2\tau_0\frac{v(t_M-\tau_0)}{c}\delta\right) = 0.5cos\left(\phi_0+\frac{L\omega_0}{c}+\omega_0\left(t-\tau_0+\frac{2l(t_M-\tau_0)}{c}\right)\right) \tag{4.24}$$

Le terme $2\tau_0\frac{v(t_M-\tau_0)}{c}$ ne peut pas être retiré si facilement car c'est une fonction de t. Cependant, il est très petit et on peut montrer que l'expression finale se met sous la forme [36] :

$$\psi_2^C(t+L/c+l_1/c) = 0.5cos\left(\phi_0+\frac{L\omega_0}{c}+\omega_0\left(t-\tau_0-2\tau_0\frac{v(t_M-\tau_0)}{c}\delta+\frac{2l(t_M-\tau_0)}{c}\right)\right) \tag{4.25}$$

Maintenant que ψ_1^C et ψ_2^C ont été évalués au même temps, on peut les additionner pour calculer l'intensité finale qui sera sur l'écran.

$$\psi_1^C(t+L/c+l_1/c) = 0.5cos(\alpha_1) \tag{4.26}$$

$$\psi_2^C(t+L/c+l_1/c) = 0.5cos(\alpha_2) \tag{4.27}$$

$$\begin{aligned}I(t+L/c+l_1/c) &= (0.5cos(\alpha_1)+0.5cos(\alpha_2))^2\\ &= \tfrac{1}{4}(1+cos(\alpha_1-\alpha_2)+cos(\alpha_1+\alpha_2)+\tfrac{1}{2}(cos(2\alpha_1)+cos(2\alpha_2))\end{aligned}$$

Les 3 derniers termes oscillent très rapidement et peuvent être négligés. On obtient alors d'après 4.23 et 4.25 :

$$I(t+L/c+l_1/c) = 0.25\left(1+cos\left(\omega_0\left(\frac{2l(t_M)}{c}+\tau_0+2\tau_0\frac{v(t_M-\tau_0)}{c}\delta-\frac{2l(t_M-\tau_0)}{c}\right)\right)\right) \tag{4.28}$$

soit :

$$I = 0.25\left(1+cos\left(\omega_0\left(\frac{2\tau_0(l(t_M)-l(t_M-\tau_0))}{c\tau_0}+\tau_0+2\tau_0\frac{v(t_M-\tau_0)}{c}\delta\right)\right)\right) \tag{4.29}$$

On voit alors que la variation de la phase est directement reliée au terme $l(t_M)-l(t_M-\tau_0)$ qui n'est autre que la vitesse $v(t_M-\tau_0/2)$ multipliée par τ_0. Si τ_0 est assez petit, l'intensité peut s'écrire de manière simple [36, 35] :

$$I = 0.25\left(1+cos\left[\omega_0\left(\tau_0+2\tau_0\frac{(\delta+1)v(t_M-\frac{\tau_0}{2})}{c}\right)\right]\right) \tag{4.30}$$

Le nombre de franges dont s'est déplacé l'interférogramme est simplement la phase divisé par 2π.

$$F = \Delta\frac{\varphi}{2\pi} = \frac{\varphi}{2\pi} \tag{4.31}$$

comme $\varphi = 0$ avant que la surface se mette en mouvement.

On trouve finalement [36] :

$$F = 2\tau_0\frac{(\delta+1)v(t_M - \frac{\tau_0}{2})}{\lambda_0} \tag{4.32}$$

Appliquons maintenant cette formule à nos expériences.

cas 1 : la vitesse varie instantanément de 0 à V

Avant que la surface ne se mette en mouvement, la phase est considérée comme égale à 0. A $t = 0$, la surface se met en mouvement instantanément à la vitesse V. Pendant l'intervalle $0 < t < \tau_0$, la vitesse moyenne est $< v(t_M - \frac{\tau_0}{2}) >= Vt/\tau$, donc :

$$\Phi(t)/2\pi = 2Vt/\lambda_0 \tag{4.33}$$

Pour t>τ, on a v(t)=V, donc :

$$\Phi(t)/2\pi = (1+\delta)2V\tau_0/\lambda_0 \tag{4.34}$$

L'interférogramme s'est donc déplacé d'un nombre de franges :

$$F = \Delta\Phi/2\pi = (1+\delta)2V\tau_0/\lambda_0 \tag{4.35}$$

cas 2 : la vitesse change lentement

Si la vitesse varie lentement, le nombre de franges sera simplement :

$$F = \Delta\Phi/2\pi = (1+\delta)2v(t)\tau_0/\lambda_0 \tag{4.36}$$

CQFR : La vitesse de la surface réfléchissante se manifeste au niveau de l'interférogramme par un saut de frange. Ce saut de franges peut être relié directement à la vitesse par la relation : $F = (1+\delta)2v(t)\tau_0/\lambda_0$ où δ et τ_0 sont caractéristiques de l'étalon utilisé pour introduire le retard.

4.1.5 Sensibilité des visars

On définit la sensibilité des visars S comme :

$$S = \frac{\lambda_0}{2\tau_0(\delta+1)} \tag{4.37}$$

ce qui donne :

$$v(t) = F.S \tag{4.38}$$

L'interférogramme va donc se décaler d'un nombre $F_1 + f_1$ de franges où F_1 est un nombre entier et f_1 est une fraction de frange (figure 4.6). Lors de l'analyse des images VISAR, on ne peut mesurer directement que le décalage f_1 entre deux franges successives. On ne peut pas avoir l'information sur le nombre exact de franges entières F_1 décalées en plus de f_1.

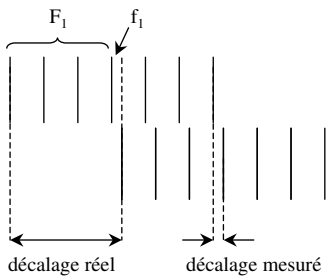


FIG. 4.6 – Décalage des franges

Pour résoudre cette ambiguïté, deux visars de sensibilité différentes S_1 et S_2 sont utilisés. On a alors :

$$v(t) = (F_1 + f_1).S_1 \tag{4.39}$$

et

$$v(t) = (F_2 + f_2).S_2 \tag{4.40}$$

S_1 et S_2 sont connus, f_1 et f_2 sont mesurés et il ne reste qu'à trouver par essais successifs les valeurs de F_1 et de F_2 pour que la vitesse trouvée soit la même pour les deux visars. Souvent lorsque les visars donnent des valeurs incohérentes entre elles, les hypothèses de départ sont à revoir dans l'analyse des images.

Rq : A Rochester, les deux visars fonctionnent à la même longueur d'onde, seul l'étalon change. Au LULI, par contre, des longueurs d'onde différentes sont utilisées en plus des étalons. Pour la détermination de la vitesse du front réfléchissant, cela n'apporte rien. En revanche, cela permet de connaître la réflectivité du milieu à deux longueurs d'onde. Cela apporte donc une information supplémentaire toujours utile dans l'interprétation des données.

CQFR : Lors de l'analyse des images VISAR, seul le décalage correspondant à une fraction de franges peut être mesuré. Pour trouver combien de franges entières, en plus de la fraction, se sont décalées, deux VISAR avec des étalons différents sont utilisés. Il suffit alors de trouver le nombre entier correspondant à chaque VISAR qui donnera la même vitesse.

4.1.6 Influence de la réflectivité de la surface en mouvement

Pour le moment, nous n'avons pas vraiment parlé de la réflectivité de la surface en mouvement, ou plutôt nous avons dit qu'elle était égale à 1 et qu'il n'y avait pas de déphasage. Si nous voulons la prendre en compte, il faut introduire un déphasage temporel τ_R et un coefficient de réflexion $R(t)$. On a alors :

$$\psi_1^C(t) = 0.5R(t-\tau)cos(\alpha_1 + \tau_R(t-\tau)) \tag{4.41}$$

$$\psi_2^C(t) = 0.5R(t)cos(\alpha_2 + \tau_R(t)) \tag{4.42}$$

On obtient finalement :

$$I(t) \propto (\frac{1}{2}(R(t) - R(t-\tau))^2 + R(t)R(t-\tau)(1 + cos\phi(t))) \tag{4.43}$$

$$\frac{\phi(t)}{2\pi} = \frac{\tau_R(t) - \tau_R(t-\tau)}{2\pi} + 2\tau_0\frac{(\delta+1)v(t_M - \frac{\tau_0}{2})}{\lambda_0} \tag{4.44}$$

4.1.7 Nature de l'interface réfléchissante

Le calcul précédent estime l'effet Doppler pour une interface se déplaçant dans le vide. Cependant dans les expériences, la vitesse de choc est mesurée à l'interface entre le matériau étudié et un matériau transparent. La présence de ce matériau et son éventuelle compression affecte l'effet Doppler et doit donc être pris en compte [37].

La vitesse mesurée par le VISAR, $v_{apparent}$, correspond à :

$$v_{apparent} = -\frac{dL_{opt}}{dt} \tag{4.45}$$

où L_{opt} est la longueur optique totale qui permet d'arriver jusqu'au VISAR.

Appliquons cela à plusieurs cas particuliers que l'on peut rencontrer dans nos expériences.

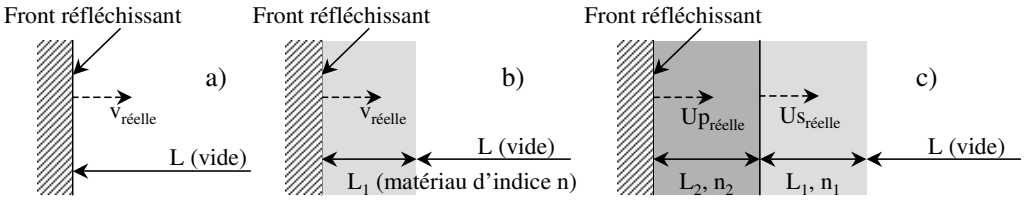


FIG. 4.7 – Différents cas de surfaces réfléchissantes. a) la surface réfléchissante est en contact direct avec le vide. b) la lumière visar traverse un matériau d'indice n avant d'atteindre la surface réfléchissante. c) la lumière visar traverse deux milieux d'indice n1 (par exemple de l'hélium non comprimé) et n2 (hélium comprimé par le passage de l'onde de choc qui avance à la vitesse Us)

Interface métal-vide

C'est le cas le plus simple qui correspond aux calculs effectués (figure 4.7a).

$$L_{opt} = L - v_{relle}t \tag{4.46}$$

donc

$$v_{relle} = v_{apparent} = S.F \tag{4.47}$$

Interface métal-n-vide

Ce cas correspond par exemple à la réflexion du VISAR sur le front de choc réfléchissant dans de l'hélium. La lumière traverse donc de l'hélium non comprimé avant d'atteindre le front réfléchissant (figure 4.7b).

$$L_{opt} = L + n(L_1 - v_{relle}t) \tag{4.48}$$

ce qui donne :

$$v_{apparent} = n.v_{relle} = S.F \tag{4.49}$$

La vitesse réelle recherchée est alors :

$$v_{relle} = \frac{S.F}{n} \tag{4.50}$$

Interface métal-n2-n1-vide

Ce cas peut correspondre à la réflexion du VISAR sur le pousseur (quartz dans notre cas) alors que le front de choc est dans l'hélium et il n'est pas réfléchissant (figure 4.7c). On a alors :

$$L_{opt} = L + n_1(L_1 - Us_{relle}t) + n_2(L_2 - Up_{relle}t + Us_{relle}t) \tag{4.51}$$

$$v_{apparent} = S.F = n_1 Us_{relle} + n_2(Up_{relle} - Us_{relle}) \tag{4.52}$$

$$v_{apparent} = (n_1 - n_2)Us_{relle} + n_2 Up_{relle} \tag{4.53}$$

D'après les relations de Rankine-Hugoniot, on peut exprimer la vitesse de choc en fonction de la vitesse particulaire :

$$v_{apparent} = (n_1 - n_2)\frac{\rho_2 Up_{relle}}{\rho_2 - \rho_1} + n_2 Up_{relle} \tag{4.54}$$

Il faut alors faire des hypothèses sur la valeur de n_2 que l'on ne connaît pas car il est fonction de ρ_2 que l'on cherche justement à determiner. Si on considère que l'indice optique varie linéairement avec la densité (Gladstone-Dale), on peut simplifier l'expression exacte 4.54.

$$n = a + b\rho \tag{4.55}$$

Soit :

$$v_{apparent} = (a + b\rho_1 - a - b\rho_2)\frac{\rho_2 Up_{relle}}{\rho_2 - \rho_1} + (a + b\rho_2)Up_{relle} \tag{4.56}$$

$$v_{apparent} = -b\rho_2 Up_{relle} + (a + b\rho_2)Up_{relle} \tag{4.57}$$

Pour arriver à l'expression simple :

$$Up_{relle} = \frac{v_{apparent}}{a} = \frac{S.F}{a} \tag{4.58}$$

On a alors l'expression de la vitesse réelle en fonction du paramètre a qui ne dépend pas de la densité.

Lors de l'analyse, il faut donc faire les bonnes hypothèses sur la nature de la surface réfléchissante. Souvent lorsque les deux visars ne sont pas cohérents entre eux, c'est le signe d'une mauvaise hypothèse sur la nature du front réfléchissant.

CQFR : La vitesse mesurée par le VISAR n'est qu'une vitesse apparente. Il faut tenir compte des milieux traversés par le laser sonde pour obtenir la vitesse réelle : $v = \frac{S.F}{n}$

4.2 Traitement des données

4.2.1 Données VISAR

Comme nous l'avons vu dans le premier paragraphe de ce chapitre, un VISAR est avant tout un interféromètre. Une image typique sans choc représente donc une série de franges. Lorsque le choc arrive, on observe simultanément deux phénomènes : le décalage des franges engendré par la mise en vitesse de la surface réfléchissante et un changement d'intensité dû au changement de nature de la surface réfléchissante. On peut donc extraire la vitesse de l'onde de choc ainsi que la réflectivité du front réfléchissant. La figure 4.8 présente une image typique obtenue sous choc. Le traitement d'une image VISAR consiste alors à mesurer le saut de franges observé pour trouver la vitesse de choc et à analyser les changements d'intensité pour trouver la réflectivité.

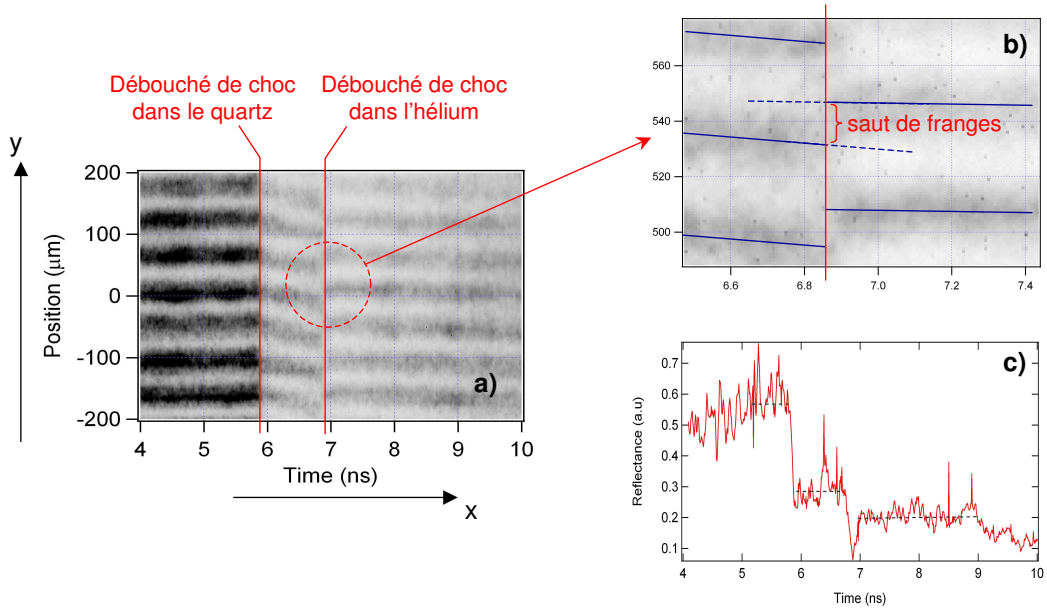


FIG. 4.8 – Image VISAR typique. a) Les traits verticaux rouges représentent le débouché de choc respectivement dans le quartz, matériau de référence, puis dans l'hélium. b)Cette image représente un zoom au niveau du débouché. Les droites bleues sont des guides pour les yeux symbolisant une frange. On observe un saut de franges au débouché caractérisé par une discontinuité de la frange. Ce saut est proportionnel à la vitesse de la surface réfléchissante. c) Profil en intensité de l'image a). Les sauts d'intensité observés sont dus aux changement de nature de la surface réfléchissante.

Une image de référence est toujours collectée quelques secondes avant le tir. Cette image de référence permet, comme nous allons le voir, d'identifier et de quantifier certains problèmes liés à l'instrumentation.

CQFR : Une image VISAR se présente sous la forme d'un interférogramme. Deux informations peuvent être extraites de l'image : la vitesse du choc porté par le saut de frange et la réflectivité de la surface réfléchissante reliée au saut d'intensité de l'image.

4.2.2 Traitement de l'image

4.2.2.1 Distorsion de l'image

Après avoir enlevé le bruit sur l'image visar et l'image de référence, il faut réduire la distorsion apportée par la caméra. Cette distorsion se manifeste par un décalage spatial et éventuellement un élargissement ou une réduction de la taille des franges. L'utilisation de l'image de référence permet de quantifier cette distorsion qui peut être ensuite retirée sur l'image visar. Il est important de l'enlever car elle entraîne une variation virtuelle de la phase qui pourrait fausser la mesure de la phase réelle et donc fausser la vitesse du front réfléchissant.

Les deux images suivantes présentent un exemple de distorsion. L'image de gauche est une image de référence non traitée et l'image de droite est la même image traitée. On voit en particulier que les franges ne sont plus inclinées. En dessous de chaque image est représentée l'évolution de la phase en unité arbitraire. Avant traitement de l'image, la phase augmente linéairement alors que la surface réfléchissante est immobile. Après correction de cette distorsion, la phase reste constante.

Le traitement peut se décomposer suivant le schéma suivant illustré figure 4.10 :

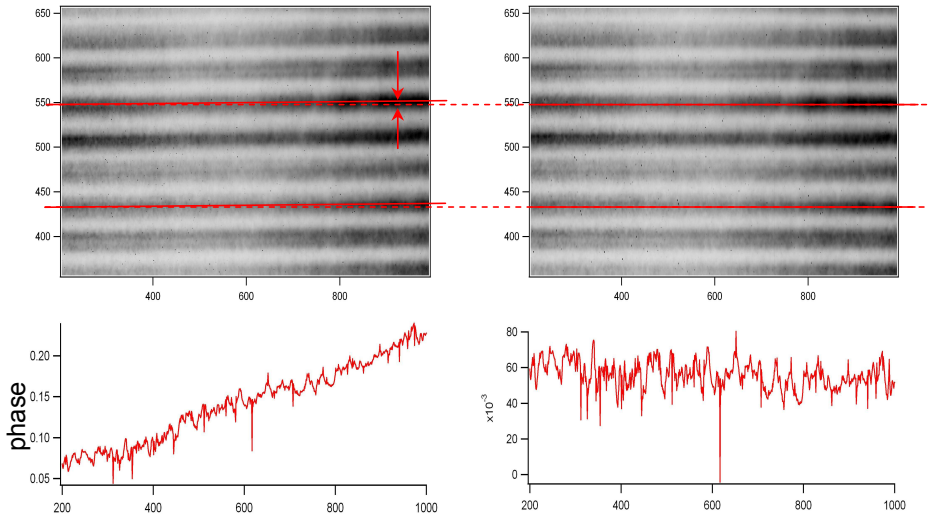


FIG. 4.9 – Image de référence avant (gauche) et après (droite) traitement. Les lignes rouges solides sont des guides pour les yeux pour suivre une frange. Les lignes en pointillés représentent des lignes horizontales. Le décalage entre une ligne pointillée et une ligne solide est souligné par les deux flèches. Ce décalage n'existe plus lorsque l'image a été traitée. Les deux images en dessous représentent l'évolution de la phase. On peut voir qu'avant traitement la phase augmente alors que la surface réfléchissante est immobile. Après traitement, on retrouve une phase nulle correspondant à une surface immobile.

La zone de référence doit être la même que la zone à étudier sur l'image visar. Le profil d'intensité suivant x est déterminé au centre de la zone et il sert de référence pour normaliser l'ensemble de la zone. Cette normalisation permet d'éliminer des éventuels écarts d'intensité entre certaines zones de l'image. On peut voir en effet que certaines zones de l'image sont plus sombres que d'autres montrant ainsi des différences d'intensité dans le signal (figure 4.10 a).

L'idée du traitement est de voir si les franges sont décalées les unes par rapport aux autres, donnant ainsi l'impression qu'elles sont inclinées, et si elles ont toutes la même largeur. On choisit donc un profil de référence (figure 4.10b) et on compare à cette référence tous les autres profils obtenus pour des x différents. Si le profil est décalé et si la largeur des franges est différente (franges dilatées ou comprimées), on enregistre ces informations dans les valeurs offset et delta pour chaque x (figure 4.10c). Dans un premier temps, on réajuste le profil de référence à chaque x de manière à obtenir un profil moyen et une fois ce profil moyen déterminé, on recommence la comparaison. Cela correspond aux deux boucles successives du schéma. On obtient à la fin un offset et un delta pour chaque x de la zone désirée.

On ajuste alors ces deux courbes, offset et delta, avec des polynômes de degrés plus ou moins élevés selon la précision souhaitée et on applique cette transformation à l'image visar (figure 4.10d). Pour chaque x de l'image visar, on ajoute l'offset et le delta trouvé au même x sur l'image de référence. On enlève ainsi toute variation de la phase due à autre chose qu'une variation de vitesse.

4.2.2.2 Franges parasites

Il peut arriver dans certains cas que des réflexions parasites entraînent l'apparition de franges parasites qui, additionnées aux franges réelles, donnent une fausse évolution de la phase et donnent parfois l'impression de sauts de frange et de perte de contraste. Ce problème est illustré figure 4.11. Les deux images en haut représentent à gauche l'image contenant l'information (inclinaison continue des franges) et à droite des franges parasites. On superpose ces deux images en simulant des franges fantômes plus ou moins intenses (C=0.1, 0.5 ou 1). Les 3 images en dessous sont les images obtenues pour les diffé-

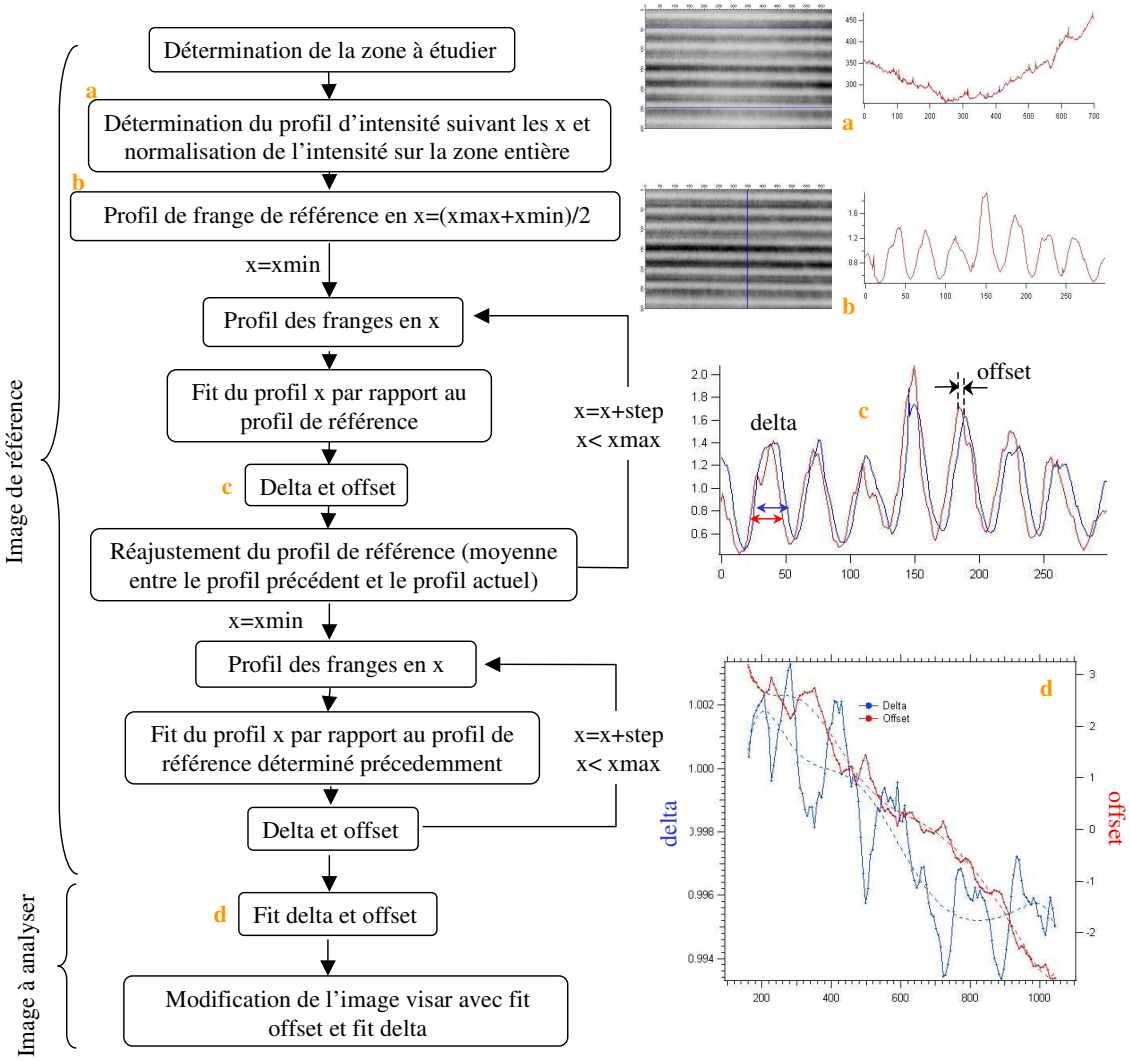


FIG. 4.10 – Représentation schématique du traitement de la distorsion des images. C'est sur l'image de référence que le décalage et la dilatation ou compression des franges sont quantifiés. Une fois la distorsion identifiée, la correction est appliquée à l'image VISAR.

rentes valeurs de C. On peut voir que plus l'intensité des franges parasites est importante, plus l'effet est apparent. Essayons maintenant de retrouver l'information portée par les franges inclinés dans ces trois cas. La figure 4.12 présente l'évolution de la phase mesurée.

La courbe bleue représente l'évolution de la phase réelle pour une image sans franges parasites. Elle diminue de manière régulière ce qui correspond à des franges inclinées. Lorsque les franges parasites ne sont plus négligeables, on voit que la phase diminue moins rapidement (data+0.5*ghost, courbe orange) et des sauts de franges peuvent même apparaître (data+1*ghost, courbe verte). La présence de franges parasites peut ainsi modifier l'évolution de la phase donnant une évolution de la vitesse du front réfléchissant erronée.

Pour pouvoir enlever ces franges, il faut dans un premier temps trouver un endroit de l'image où elles sont apparentes et où elles ne se superposent pas avec les franges réelles. C'est en général, la partie la plus délicate de l'analyse car il ne faut pas éliminer des franges porteuses d'informations. On détermine

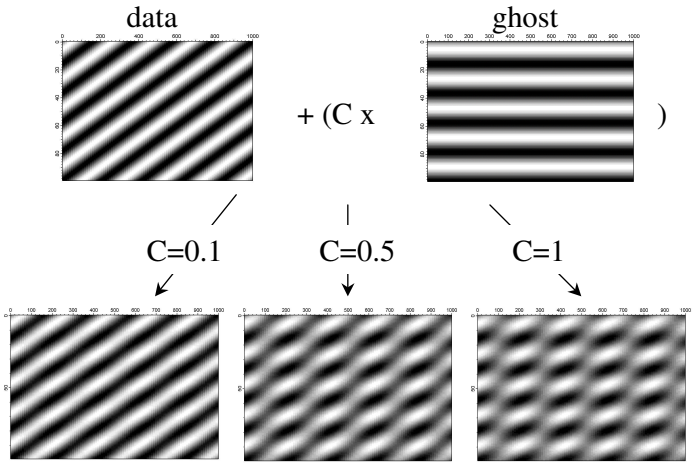


FIG. 4.11 – Illustration de l'effet de franges parasites ajoutées au signal. Un signal parasite (ghost) est superposé au signal (data). Ce signal est plus ou moins intense (C=0.1, 0.5 ou 1)

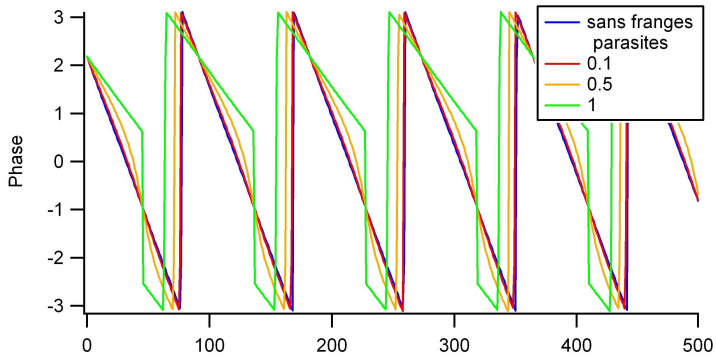


FIG. 4.12 – Phase mesurée pour les différents cas de franges parasites. La courbe bleue est obtenue lorsqu'il n'y a pas de franges fantômes et les courbes rouges, oranges et vertes lorsque leur intensité est de 0.1, 0.5 et 1 respectivement.

alors le profil des franges parasites de manière à le soustraire ensuite à l'ensemble de l'image. Comme nous l'avons vu précédemment, l'intensité de l'image peut varier d'une zone à l'autre. Il faut donc soustraire ces franges de manière proportionnelle à ces variations d'intensité. Le profil d'intensité qui sera appliqué aux franges parasites est déterminé grâce à l'image de référence. La figure 4.13 récapitule la procédure pour retirer les franges parasites.

Nouvelle approche Jon Eggert a mis au point une analyse systématique des images pour éliminer cet effet. On mesure un signal $f(x)$ constitué de la somme d'un signal parasite 1 et d'un signal portant l'information 2 :

$$f(x) = Re\left[A_1\left(C + e^{i(kx+\phi_1)}\right) + A_2\left(C + e^{i(kx+\phi_2)}\right)\right] \tag{4.59}$$

ce qui donne :

$$f(x) = A_1 Re\left[C\left(1 + \frac{A_1}{A_2}\right) + Be^{i(kx+\phi)}\right] \tag{4.60}$$

avec, en considérant que $\phi_1 = 0$ pour les franges parasites, $A = A_2/A_1$,

$$B = (1 + A^2 + 2Acos\phi_2)^{1/2} \tag{4.61}$$

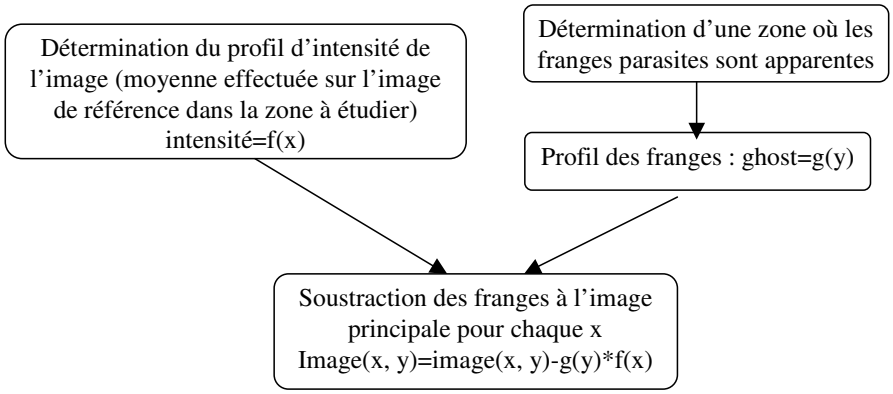


FIG. 4.13 – Représentation schématique du traitement des images ayant des franges parasites. Pour rappel, la notation x correspond à l'échelle des temps et la notation y à la position comme illustrée sur la figure 4.8

et

$$\phi = arctan\left(\frac{Asin\phi_2}{1 + Acos\phi_2}\right) \tag{4.62}$$

Il ressort alors la quantité R qui correspond au rapport signal/bruit obtenu à partir de l'image finale soit :

$$R = \frac{B}{C(1+A)} = \frac{(1 + A^2 + 2Acos\phi_2)^{1/2}}{C(1+A)} \tag{4.63}$$

La quantité C représente le contraste de l'image VISAR soit le rapport signal/bruit obtenu à partir de l'image de référence. A est le rapport entre le signal et les franges parasites. C'est cette quantité qu'il faut déterminer en même temps que ϕ_2. L'ensemble 4.62 et 4.63 constitue une ensemble de deux équations à deux inconnues.

CQFR : Avant la mesure finale du saut de franges, deux traitements sont nécessaires. La première correction à apporter est dûe aux distorsions apportées par la caméra elle même. Cette correction peut être quantifiée à partir de l'image de référence et ensuite appliquée à l'image finale. La deuxième est liée à l'existence de franges parasites qui peuvent masquer l'information. Ce traitement est plus délicat car il nécessite de soustraire ces franges sans modifier le signal réel.

4.2.3 Extraction de l'information

La vitesse du front réfléchissant est déterminée comme nous l'avons vu précédemment par la phase du signal. Plusieurs méthodes existent pour extraire cette information. La méthode choisie est basée sur la méthode par transformée de Fourier développée par Takeda [38].

On considère dans un premier temps que le signal peut être représenté par une fonction de la forme [39] :

$$S(y,t) = B(y,t) + A(y,t)cos(\varphi(y,t) + \omega_0 y + \delta_0) \tag{4.64}$$

$\omega_0 y$ représente le signal des franges, δ_0 une phase arbitraire qui sera ici prise égale à 0 et $\varphi(y,t)$ la phase des franges qui contient l'information cherchée, c'est à dire la vitesse de la surface réfléchissante. $B(y,t)$ représente un signal de bruit de fond que l'on considère comme variant lentement et A(y,t) est l'amplitude des franges. On peut écrire 4.64 en utilisant la notation complexe :

$$S(y,t) = B(y,t) + C(y,t)exp^{i\omega_0 y} \tag{4.65}$$

où :

$$C(y,t) = A(y,t)exp^{i\varphi(y,t)}/2 \tag{4.66}$$

On applique alors la transformée de Fourier à S(y,t) suivant les y à t constant.

$$s(\omega,t) = \int_{-\infty}^{+\infty} S(y,t)e^{-i\omega y}dy = b(\omega,t) + c(\omega-\omega_0,t) + c^*(\omega+\omega_0,t) \tag{4.67}$$

On choisit alors le domaine de fréquence qui nous intéresse et qui contient le signal, domaine de fréquence autour du lobe c centrée sur les fréquences positives. Les basses fréquences correspondant au bruit sont ainsi éliminées. On prend alors la transformée de Fourier inverse pour obtenir la fonction complexe suivante :

$$D(y,t) = C(y,t)exp^{i\omega_0 y} \tag{4.68}$$

Il suffit alors d'extraire la phase recherchée.

$$\phi(y,t) = arctan(Re(D)/Im(D)) \tag{4.69}$$

Cependant la phase obtenue lors de cette opération est calculée modulo 2π. L'étape finale est alors d'enlever cet effet pour obtenir la phase et remonter à la vitesse.

CQFR : La phase est mesurée grâce à une méthode de transformée de Fourier.

4.2.4 Précision atteinte

Peter Celliers [39], par comparaison minutieuse de données obtenus à basses et hautes intensités, a estimé que l'erreur sur la phase des franges est de 0.05 franges soit environ 0.3 rad. Cette incertitude est systématique et provient du système de mesure en lui même. L'extraction de la phase suppose en effet que les termes A(x,t) et B(x,t) varient lentement ce qui n'est pas toujours le cas et ce qui peut entraîner une perte d'information car mélangée avec d'autres termes. De nouvelles méthodes ont été développées [40, 41], mais, de par leur complexité, elles ne sont pas utilisables pour le moment dans nos expériences.

Pour obtenir une bonne précision sur la mesure de la vitesse, il faut que les paramètres de sensibilité du VISAR soient bien choisis. Pour des mesures précises, la sensibilité du visar a été choisie pour que dans le domaine des vitesses étudiées, le déplacement des franges soit d'environ 7 franges. Dans nos expériences, le déplacement correspondait plus à 5 franges environ. L'erreur sur chaque frange étant de 0.05, cela donne une erreur relative de $0.05/5 \leq 1\%$ pour la détermination de la vitesse. Même en utilisant un grand nombre de franges, l'erreur principale vient de la méthode d'extraction de la phase. Cette erreur de 0.05 franges, appliquée à la sensibilité la plus faible des deux visars (soit 6.9 km/s/frange), donne une limite de détection de $0.35km/s$ et donc une erreur relative autour de 1% pour des vitesses de l'ordre de 20 km/s dans le matériau.

CQFR : La précision atteinte est de l'ordre de 1% pour des vitesses supérieures à 4.3 km/s

Chapitre 5

Une nouvelle métrologie : utilisation du quartz

Sommaire

5.1 Avantages du quartz **85**
5.2 Equation d'état du quartz **86**
5.2.1 Diagramme de phase du quartz et propriétés 86
5.2.2 Données expérimentales sur l'Hugoniot 87
5.3 Modèle de détente **89**
5.3.1 Modèle de Grüneisen 89
5.3.2 Détermination expérimentale du coefficient de Grüneisen 90
5.3.3 Approximation de la détente isentropique 91
5.3.4 Approximation de l'Hugoniot secondaire 94
5.3.5 Comparaison du modèle avec les modèles existants 95
5.3.6 Comment prendre en compte la précompression ? 96
5.4 Mesure de réflectivité **97**
5.5 Mesure de température **99**
5.5.1 Technique de mesure 99
5.5.2 Utilisation du quartz comme référence in situ 100
5.6 Estimation des barres d'erreur **102**
5.6.1 Erreur sur la vitesse de choc 102
5.6.2 Erreur sur la pression P et la vitesse particule U_p 103
5.6.3 Erreur sur la réflectivité 105
5.6.4 Erreur sur la température 105

5.1 Avantages du quartz

Comme nous l'avons vu précédemment, la méthode de désadaptation d'impédance est basée sur l'utilisation d'un matériau de référence. Ce matériau de référence doit être parfaitement connu car c'est sur lui que repose la détermination de l'équation d'état du matériau étudié.

Les premiers matériaux utilisés comme référence ont été le molybdène [42] et le fer [43]. De nos jours, le matériau de référence le plus utilisé est l'aluminium. C'est un métal simple pour le calcul et

la modélisation de ses propriétés. Son Hugoniot et son équation d'état ont été largement étudiées. Son équation d'état est supposée bien connue maintenant ce qui en fait un matériau de référence idéal. La vitesse de choc est estimée grâce à la mesure du temps de transit du choc dans une marche d'épaisseur connue. Cependant de par les petites dimensions de l'échantillon, l'erreur sur la hauteur de la marche peut être grande entraînant ainsi des erreurs de 5% minimum sur la mesure de la vitesse de choc, erreur qui se propage ensuite et qui peut entraîner jusqu'à 40% d'erreur sur la densité. Pour résoudre ce problème, l'aluminium est remplacé par du quartz. Comme le quartz devient réfléchissant très tôt (vitesse de choc de 13 km/s, soit une pression de l'ordre de 2 Mbar) [44], la vitesse de choc peut être mesurée directement avec le VISAR. L'incertitude sur l'épaisseur ne rentre donc plus en compte et seule l'erreur intrinsèque de la mesure VISAR intervient. On obtient alors des précisions de l'ordre de 1% (voir paragraphe sur le VISAR).

En plus de diminuer les barres d'erreur, le quartz est utilisé comme référence in-situ pour la mesure de la réflectivité et de la température. La température et la réflectivité du quartz ont été calibrées en fonction de la vitesse de choc par Hicks et al. [44]. La connaissance de la fonction de transfert souvent difficile à évaluer n'est alors plus nécessaire. On peut ainsi en comparant directement le signal du quartz dont on connaît la réflectivité et la température et le signal de l'échantillon étudié remonter à la température et la réflectivité de l'échantillon.

Un autre avantage est la reproductibilité des échantillons. Les plaques de quartz utilisées sont très bien caractérisées avant chaque mesure. Il n'y a ainsi pas de variations entre des mesures effectuées sur des échantillons différents. Enfin, le quartz existe sous différentes formes alpha-quartz, coesite, stishovite, silice fondue à des densités différentes. On peut alors estimer la variation de l'Hugoniot principale en fonction de la précompression et ainsi prendre en compte cette déviation.

Toutes ces raisons en font un candidat idéal pour servir de référence dans les expériences laser. Nous allons voir dans un premier temps ses caractéristiques principales et les données existantes. Ensuite, nous présenterons le modèle d'équation d'état développé pour une utilisation de métrologie et enfin nous verrons comment le quartz sert de référence in-situ pour les mesures de température et de pression.

CQFR : Le quartz, devenant réfléchissant très tôt, permet une mesure directe de la vitesse de choc avec le VISAR diminuant ainsi les barres d'erreur ($\sim 1\%$). Il sert de plus de référence in-situ pour la mesure de réflectivité et de température.

5.2 Equation d'état du quartz

5.2.1 Diagramme de phase du quartz et propriétés

Le quartz, depuis plusieurs années, a été très étudié par les géophysiciens. Il est en effet le constituant principal du manteau terrestre et connaître ses propriétés thermodynamiques et mécaniques est très important pour les études sur l'intérieur de la Terre. Il se présente sous différentes formes cristallines qui ont été le sujet de beaucoup d'études théoriques et expérimentales. Sa forme sous hautes pressions, la stishovite, est particulièrement importante pour ses implications dans le manteau terrestre. La figure 5.1 présente le diagramme de phase du quartz. Le domaine qui nous intéresse pour les chocs étudiés va de 100 GPa à 1000 GPa et de 10000 à 40000K. Dans cette zone, le quartz est entièrement liquide et partiellement dissocié. Nous n'aurons donc pas besoin lors de notre étude de nous intéresser aux différentes et nombreuses formes solides qui existent (quartz, stischovite, coesite) qui peuvent être récupérées à pression ambiante. Le diagramme de phase du quartz très complexe est très riche dans la phase solide, mais les propriétés se simplifient énormément dans la phase liquide.

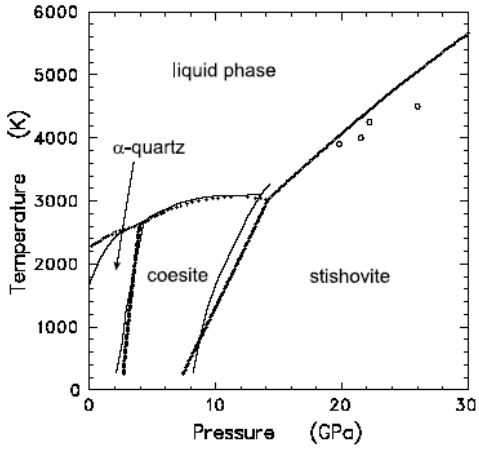


FIG. 5.1 – Diagramme de phase du quartz [45]

5.2.2 Données expérimentales sur l'Hugoniot

Afin de pouvoir utiliser le quartz comme matériau de référence, il faut pouvoir appliquer la méthode de désadaptation et donc connaître son Hugoniot et son isentrope de détente de manière très précise.

L'équation exacte dans le plan P-U_p de l'Hugoniot est déterminée par la loi de conservation de l'impulsion, $P = \rho_0 U_s(U_p)U_p + P_0$. Dans la plupart des cas, une relation linéaire entre U_s et U_p [46, 47, 48] permet de bien reproduire les données expérimentales. L'expression de P peut alors être écrite en fonction de U_p uniquement. Les premières expériences de chocs n'allaient à l'époque que jusqu'à quelques 100 kbar et les théoriciens se sont donc concentrés sur la partie basse pression.

Sur un domaine plus large de pression, une relation quadratique est utilisée. On peut alors montrer [49] que les coefficients sont reliés au module d'incompressiblité et à sa dérivée en pression.

$$U_s = c + sU_p + s'U_p^2 + ... \tag{5.1}$$

avec

$$B_0 = V\left(\frac{\partial P}{\partial V}\right)_T \tag{5.2}$$

$$c = (\frac{B_0}{\rho_0})^{1/2} \tag{5.3}$$

$$s = \frac{B_0' + 1}{4} \tag{5.4}$$

En fait, les mesures de l'Hugoniot maintenant effectuées sur un grand domaine de pression montrent qu'une représentation avec deux droites [50] ajuste mieux les données expérimentales (transition de phase).

L'ensemble des mesures expérimentales sur l'Hugoniot du quartz sont présentées sur la figure 5.2. Les différentes variations de la courbe pour U_p < 3km/s sont dues aux différents changements de phase du quartz. Nous nous sommes intéressés uniquement à la partie U_p > 3km/s pour le calcul de l'Hugoniot. On peut alors fitter cet ensemble de points par deux droites [51]. Pour U_p < 6.358 km/s, on a :

$$U_s = 6.949(\pm 0.0297) + 1.6671(\pm 0.0414)(U_p - 3.0452) \tag{5.5}$$

et pour U_p > 6.358 km/s :

$$U_s = 19.5008(\pm 0.0679) + 1.2763(\pm 0.0222)(U_p - 11.8653) \tag{5.6}$$

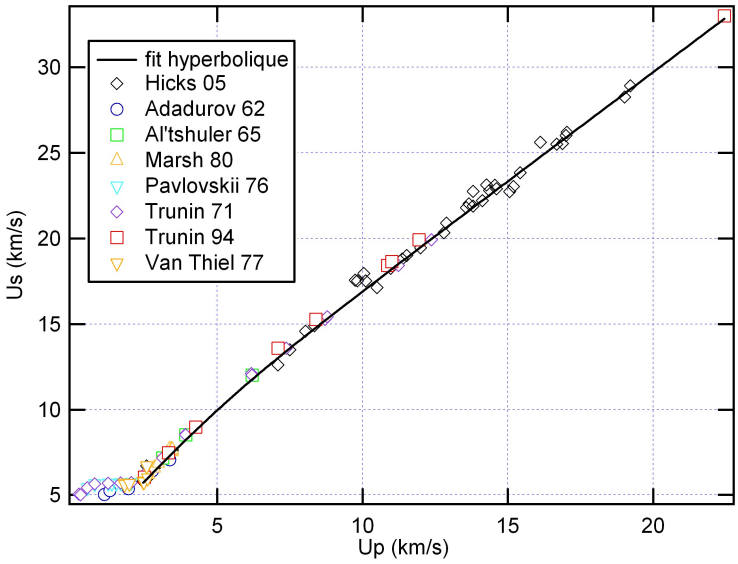


FIG. 5.2 – Hugoniot du quartz : ensemble des mesures expérimentales de l'Hugoniot du quartz. La courbe noire est le fit hyperbolique de l'ensemble des données à pour U_p > 3km/s

Pour atténuer le changement de pente autour de U_p, nous avons fitté l'ensemble de ces points par une hyperbole représentée en noir sur la figure 5.2. Cette légère modification évite l'apparition de discontinuités autour de U_p=6.358 km/s dans le modèle de détente isentrope. Les caractéristiques de l'hyperbole sont données figure 5.3.

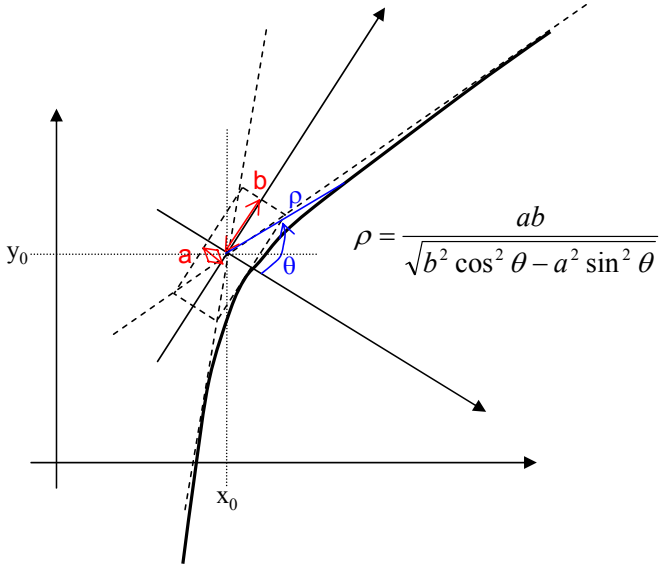


FIG. 5.3 – Hyperbole du quartz pour fitter l'Hugoniot : a=0.69054 ; b=7.2267 ; x_0=5.4709 ; y_0=11.902 ; α=0.59089

CQFR : Le quartz, matériau très complexe en phase solide se simplifie en phase fluide, domaine atteint par les ondes de choc. Son Hugoniot est déterminé de façon très précise en fittant l'ensemble des données expérimentales existantes par une hyperbole.

5.3 Modèle de détente

Pour que le quartz puisse être utilisé comme matériau de référence dans la méthode de désadaptation d'impédance, il faut connaître l'isentrope de détente à partir d'une pression P. Au contraire de l'Hugoniot, il n'existe aucune donnée expérimentale dans ce domaine. Il est alors nécessaire à ce stade d'utiliser un modèle pour décrire au mieux cette détente (ou Hugoniot secondaire selon le matériau étudié).

5.3.1 Modèle de Grüneisen

Comme nous l'avons vu dans les chapitres précédents, l'isentrope de détente diffère de l'Hugoniot symétrique seulement au 3eme ordre. Une première approximation est donc de remplacer l'isentrope de détente par l'Hugoniot symétrique. La région où cette approximation est valable correspond approximativement au domaine de pressions allant de la pression initiale de choc à 2/3 de P_i [52, 53]. Julius Enig [54] donne une description thermodynamique complète de plusieurs métaux dont l'EOS est basée sur cette approximation. Il considère que l'équation de l'isentrope dans le plan P, U_p est celle de l'Hugoniot symétrique et remonte ensuite par des relations isentropiques dans le plan P,V. Il ressort de cette étude qu'une description thermodynamique basée sur cette hypothèse donne l'impression que le métal est moins compressible qu'une description basée sur une équation de Mie-Grüneisen [55, 56, 57, 58]. De plus les températures obtenues le long de l'Hugoniot symétriques sont plus basses.

Pour les matériaux de très faible densité comme l'hydrogène , cette approximation ne peut pas être utilisée car l'écart entre l'Hugoniot symétrique et l'isentrope réelle n'est plus négligeable. La détente du quartz va jusqu'à $P_i/6$. Une isentrope plus précise doit être trouvée. Kerley a développé récemment une table d'équation d'état complète dans laquelle la fusion et la dissociation ont été prises en compte. Cependant nous ne souhaitions pas utiliser de tables afin de pouvoir contrôler exactement toutes les approximations faites et de nous rendre compte de la propagation des barres d'erreur.

L'isentrope de détente peut être estimée à partir de l'Hugoniot en utilisant un modèle de Grüneisen [55, 56, 57, 58]. La définition thermodynamique du coefficient de Grüneisen est : $g = V(\frac{dP}{dE})_V$. Comme cette relation est valable quelle que soit la température, on peut déterminer n'importe quelle énergie à partir d'un point que l'on connaît. Si on intègre cette relation à partir de l'Hugoniot, on a :

$$E - E_H = \frac{V}{g(V)}(P - P_H) \tag{5.7}$$

En dérivant 5.38 par rapport à v, on obtient :

$$\frac{dE}{dV} - \frac{dE_H}{dV} = \frac{d}{dV}(\frac{V}{g(V)})(P - P_H) + \frac{V}{g(V)}(\frac{dP}{dV} - \frac{dP_H}{dV}) \tag{5.8}$$

Pour une isentrope, on a :

$$(\frac{dE}{dV})_S = P_S \tag{5.9}$$

5.8 devient alors :

$$\frac{V}{g}\frac{d(p_S - P_H)}{dV} + [1 + \frac{d}{dV}(\frac{V}{g})](P_S - P_H) = -P_H - \frac{dE_H}{dV} \tag{5.10}$$

L'approximation basée sur le coefficient de Grüneisen ne prend aucun changement de phase ou effets résiduels pouvant apparaître si l'isentrope de détente traversait une région où plusieurs phases étaient présentes. Cependant cela n'est pas un problème pour notre domaine d'étude ($U_{S_{quartz}}$>13km/s). En

effet si l'on génère une isentrope à partir d'un modèle pour un choc faible (P=3.3 Mbar), l'isentrope reste toujours dans la phase fluide à une température supérieure à 10000 K (voir figure 5.4). Il n'y a donc aucun changement de phase dans la région d'étude et le modèle de Grüneisen n'introduit donc aucune erreur liée à un changement de phase non modélisé. Le quartz reste dans une phase fluide dissociée dont la description thermodynamique est plus simple.

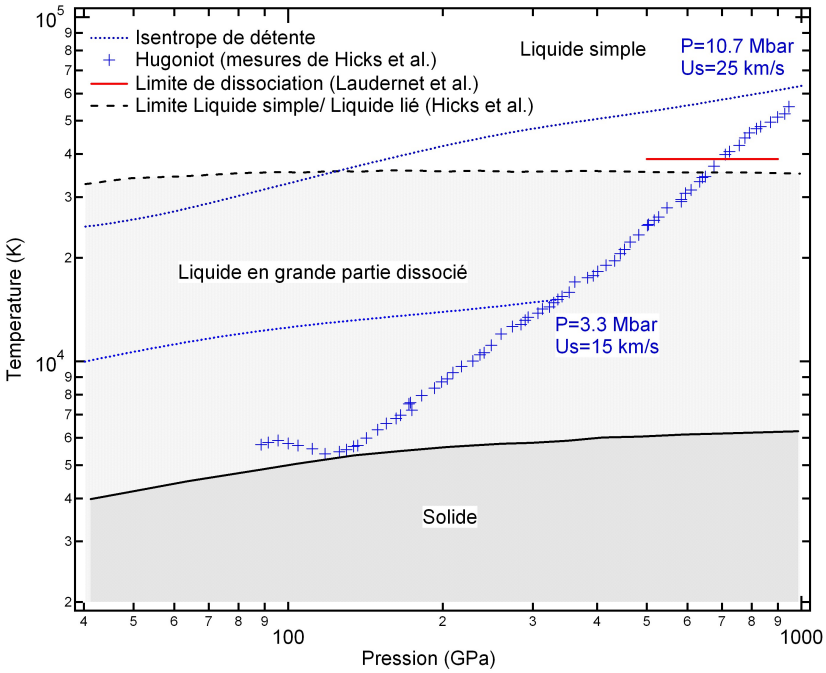


FIG. 5.4 – Détente isentropique dans le plan T-P

A partir de ce point, il est nécessaire de faire des hypothèses sur $g(V)$. Au lieu d'utiliser une formule théorique (comme présentée chapitre 2), le coefficient de Gruneisen g peut être estimé à partir des données expérimentales disponibles pour différentes formes cristallines de SiO_2.

CQFR : Le quartz, ne subissant aucun changement de phase lors de sa détente isentropique, il peut être décrit de manière simple par un modèle de Grüneisen dans la phase fluide dissociée.

5.3.2 Détermination expérimentale du coefficient de Grüneisen

Le coefficient de Grüneisen $g = V(\frac{dP}{dE})_V$ peut être estimé de manière expérimentale en mesurant la différence de pression et d'énergie à volume constant entre deux adiabats du même matériau (SiO_2) obtenues pour des densités initiales différentes (voir chapitre 2). La silice est intéressante car ses phases hautes pressions peuvent être ramenées métastables à pression ambiante. C'est ainsi que Luo et al [16, 17] ont mesuré g dans la phase stishovite à partir de l'Hugoniot du quartz, de la coesite et de la stishovite. Comme on peut le voir sur la figure 5.5, g décroît avec le volume jusqu'à 0.18 près de la fusion. Dans la phase fluide, g a été évalué par Trunin [13, 14] en comparant les Hugoniots du quartz à 2.65 g/cm3 avec les Hugoniots de deux formes poreuses à 1.75g/cm3 et 1.35 g/cm3. Il obtient alors une valeur de 0.6-0.66. On peut également évaluer ce coefficient à partir de la relation linéaire entre U_s et U_p le long de l'Hugoniot dans la phase fluide [59]. Cette approximation est exacte dans la limite de compression (évolution isochore le long de l'Hugoniot). Hicks [51] obtient ainsi une valeur de 0.6 pour un volume

plus petit que 0.18g/cm3. L'ensemble des estimations est présenté sur la figure 5.5.

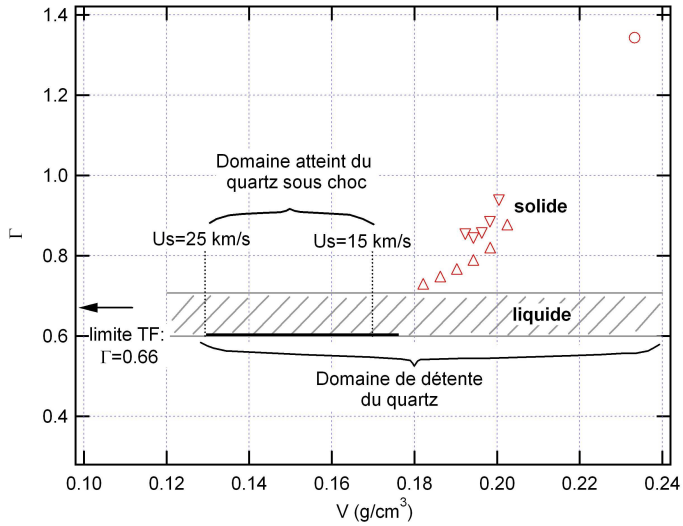


FIG. 5.5 – Coefficient de Gruneisen en fonction du volume. La zone hachurée correspond aux mesures effectuées par Trunin [14]. Les triangles droits et renversés sont les mesures de Luo et al. [16] et le rond la mesure de Watanabe et al. [60]. Le trait noir épais correspond aux mesures de Hicks et al. [51].

Une étude récente [44] sur l'évolution du coefficient de chaleur spécifique C_v le long de l'Hugoniot peut aider à comprendre pourquoi g reste constant. Une rupture de la liaison est observée dans la phase fluide au dessus de la courbe de fusion. Ce phénomène est essentiellement lié à un effet de température. La dissociation est presque complète au dessus de 20000K et totale au dessus de 35000K en accord avec les calculs ab initio [61]. Ainsi au dessus de 20000K le fluide SiO_2 se comporte comme un fluide simple à hautes températures avec un coefficient g presque constant. La valeur de 2/3 observée est la limite attendue pour la plupart des matériaux à hautes températures et hautes pressions. Cela correspond au comportement d'un gaz thermique pour les noyaux et à un comportement de type Thomas-Fermi pour les électrons. On peut donc considérer que dans la phase fluide, pour une température supérieure à 20000K, g est constant et égal à 0.66.

Rq : Le fait que g soit constant permet de déterminer très simplement la température le long de l'isentrope grâce à la relation

$$\frac{dT}{T} = g\frac{dV}{V} \tag{5.11}$$

CQFR : D'après les mesures expérimentales, g décroît en phase solide avec le volume jusqu'0.18 g/cm^3. En phase fluide, il est constant sur un grand domaine de densité. Ce phénomène serait lié à une rupture de la liaison en phase liquide liée à l'augmentation de la température. Le liquide se comporte alors comme un fluide simple.

5.3.3 Approximation de la détente isentropique

Plusieurs modèles ont été testés à partir de comportement de g différents.

Calcul pour g constant jusqu'à 0.17 et ensuite g/v=cst

Pour V<V_0 on considère que $g = g_0$=0.66, on peut alors réécrire 5.10 :

$$\frac{V}{g_0}\frac{d(P_S - P_H)}{dV} + (1 + \frac{1}{g_0})(P_S - P_H) = -P_H - \frac{dE_H}{dV} \tag{5.12}$$

Pour résoudre cette équation, on cherche d'abord une solution de l'équation sans second membre, ensuite une solution particulière de l'équation avec second membre, et enfin la solution finale sera la somme de ces deux solutions intermédiaires. L'équation sans second membre a la forme :

$$\frac{V}{g_0}\frac{d(P_S - P_H)}{dV} + (1 + \frac{1}{g_0})(P_S - P_H) = 0 \tag{5.13}$$

soit :

$$\frac{d(P_S - P_H)}{P_S - P_H} = -(g_0 + 1)\frac{dV}{V} \tag{5.14}$$

Une solution de cette équation est :

$$(P_S - P_H)(V) = e^{-(1+\frac{1}{g_0})g_0 ln(V)} = \lambda V^{-(1+\frac{1}{g_0})g_0} \tag{5.15}$$

On cherche alors une solution particulière sous la forme :

$$(P_S - P_H)(V) = h(V)V^{-(g_0+1)} \tag{5.16}$$

En remplaçant 5.16 dans 5.12, on trouve finalement :

$$\frac{dh(V)}{dV} = g_0 V^{g_0}(-P_H - \frac{dE_H}{dV}) \tag{5.17}$$

Selon l'expression du membre de droite, $h(V)$ peut être intégrée numériquement ou analytiquement. La solution finale s'écrit alors :

$$(P_S - P_H)(V) = h(V)V^{-(1+g_0)} + \lambda V^{-(1+g_0)} \tag{5.18}$$

Pour trouver la constante λ, on utilise la condition $(P_S - P_H)(V_1) = 0$ où V_1 est le volume à partir duquel le quartz se détend. On trouve alors :

$$P_S(V) = V^{-(1+g_0)}(h(V) - h(V_1) + P_H(V) \tag{5.19}$$

Cette expression est valable pour v<v_{00}=0.17. Ensuite pour V>V_{00}, g n'est plus constant, mais est une fonction croissante de V.

$$\frac{g}{V} = \frac{g_0}{V_{00}} \tag{5.20}$$

Avec cette nouvelle hypothèse, l'équation 5.10 devient :

$$\frac{V_{00}}{g_0}\frac{d(P_{S_1} - P_H)}{dV} + (P_{S_1} - P_H) = -P_H - \frac{dE_H}{dV} \tag{5.21}$$

En faisant le même raisonnement que précédemment, c'est à dire recherche d'une solution sans second membre et d'une solution particulière avec second membre, on trouve finalement :

$$(P_{S_1} - P_H)(V) = (h_1(V) + \lambda_1)e^{-\frac{g_0}{V_{00}}V} \tag{5.22}$$

avec :

$$\frac{dh_1}{dV} = \frac{g_0}{V_{00}}e^{\frac{g_0}{V_{00}}V}(-P_H - \frac{dE_H}{dV}) \tag{5.23}$$

Pour trouver λ_1, on impose la condition de continuité entre l'isentrope avant V_{00} et après. Ce qui s'écrit :

$$(P_S - P_H)(v_{00}) = (P_{S_1} - P_H)(V_{00}) \tag{5.24}$$

On trouve alors :

$$P_{S_1} = e^{-\frac{g_0}{V_{00}}V}(h_1(V) + \lambda_1) + P_H(V) \tag{5.25}$$

avec

$$\lambda_1 = (P_{S_1}(V_{00}) - P_H(V_{00}))e^{g_0} - h_1(V_{00}) \tag{5.26}$$

Pour V>V_0, volume initial, l'Hugoniot n'est plus définie. Il faut donc intégrer l'équation $g = V(\frac{dP}{dE})_V$ à partir d'un autre point. On choisit alors l'isentrope P_{S_0} qui passe par V_0. On trouve alors :

$$\frac{V}{g}\frac{d(P_S - P_{S_0})}{dV} + [1 + \frac{d}{dV}(\frac{V}{g})](P_S - P_{S_0}) = 0 \tag{5.27}$$

soit :

$$\frac{V_{00}}{g_0}\frac{d(P_S - P_{S_0})}{dV} + (P_S - P_{S_0}) = 0 \tag{5.28}$$

Ce qui donne :

$$(P_S - P_{S_0})(V) = \beta e^{-\frac{g_0}{V_{00}}V} \tag{5.29}$$

En imposant $(P_S - P_{S_0})(V_0) = (P_S - P_H)(V_0)$, on obtient :

$$P_S(V) = e^{-\frac{g_0}{V_0}V}(h(V_0) + \lambda_1) + P_H(V) + P_{S_0}(V) \tag{5.30}$$

On a alors déterminé l'expression de l'isentrope P_S pour V<0.17, 0.17<V<V_0, et V_0<V.

Calcul pour g constant quel que soit le volume Si maintenant on fait l'hypothèse que g est constant quel que soit le volume, on obtient des équations un peu différentes. Pour V<V_0, on a :

$$P_S(V) = P_H + (h(V) - h(V_1)V^{-(1+g_0)} \tag{5.31}$$

et pour V>V_0 :

$$P_S(V) = P_{S_0} + (h(V_0) - h(V_1)V^{-(1+g_0)} \tag{5.32}$$

avec :

$$\frac{dh(V)}{V} = g_0 V^{g_0}(-P_H - \frac{dE_H}{dV}) \tag{5.33}$$

Les expressions pour l'isentrope trouvées précédemment peuvent se simplifier si on suppose une relation linéaire entre la vitesse de choc et la vitesse particule : $U_S = A + BU_p$. La pression et l'énergie le long de l'Hugoniot peuvent alors s'écrire en fonction de A et B :

$$P_H = \rho_0 A^2 \frac{1 - \frac{V}{V_0}}{(1 - B(1 - \frac{V}{V_0}))^2} \tag{5.34}$$

$$E_H - E_0 = \frac{A^2}{2}\frac{(1 - \frac{V}{V_0})^2}{(1 - B(1 - \frac{V}{V_0}))^2} \tag{5.35}$$

Cela peut simplifier l'intégration de h(V). Cependant comme nous avons décidé d'ajuster la relation U_S-U_p par une hyperbole, les équations ne prennent pas une forme simple et nous sommes obligés

d'intégrer numériquement. On peut maintenant trouver pour l'isentrope la relation P(U_p) grâce à la relation (intégrale de Riemann pour un processus isentropique) :

$$u = u_1 + \int_{V_1}^{V} \sqrt{-\frac{dP_S}{dV}} dV \tag{5.36}$$

Calcul de P_{S_0} à partir de P_H

Nous avons intégré, dans le cas où V>V_0, à partir de l'isentrope P_{S_0}. On peut trouver une expression de cette isentrope à partir de l'Hugoniot en V_0. On sait que l'isentrope est différente de l'Hugoniot seulement au $3eme$ ordre, soit dans le cas où g/v est constant :

$$P_H(V) = P_{S_0}(V) + \frac{(V_0 - V)^3}{12} \frac{g_0}{V_0} (\frac{d^2 P_H}{dV^2})_0 \tag{5.37}$$

5.3.4 Approximation de l'Hugoniot secondaire

On a pu ainsi déterminer une expression pour l'isentrope de détente. On peut, par un raisonnement similaire, trouver une expression pour l'Hugoniot secondaire (points thermodynamiques d'un second choc). On part pour cela de l'expression du coefficient de Grüneisen et de la conservation de l'énergie le long de l'Hugoniot, soit :

$$E - E_H = \frac{V}{g}(P - P_H) \tag{5.38}$$

et

$$E - E_0 = (P + P_0)(V_0 - V)/2 \tag{5.39}$$

L'Hugoniot secondaire part du point E_1, P_1 et V_1 situé sur l'Hugoniot principale. On peut donc écrire la relation d'Hugoniot à partir de ce point :

$$E_2 = E_1 + (P_2 + P_1)(V_1 - V_2)/2 \tag{5.40}$$

On peut aussi déterminer E_2 à partir de 5.38 :

$$E_2 = E_{H_2} + \frac{V_2}{g}(P_2 - P_{H_2}) \tag{5.41}$$

P_{H_2} et E_{H_2} désignent la pression et l'énergie le long de l'Hugoniot principale évaluées au volume V_2. On peut donc remplacer E_{H_2} par :

$$E_{H_2} = E_0 + (P_{H_2} + P_0)(V_0 - V_2)/2 \tag{5.42}$$

De plus :

$$E_1 = E_0 + (P_1 + P_0)(V_0 - V_1)/2 \tag{5.43}$$

En égalisant 5.40 et 5.41 et en utilisant 5.42 et 5.43, on trouve :

$$P_2 = \frac{0.5\frac{g}{V_2}(-P_0(V_1 - V_2) + (P_1 - P_{H_2})(V_0 - V_2)) + P_{H_2}}{1 - \frac{g}{2V_2}(V_1 - V_2)} \tag{5.44}$$

Grâce aux autres relations de Rankine-Hugoniot, on peut exprimer la pression en fonction de la vitesse matérielle , ce qui donne :

$$U_{p_2} = \sqrt{(P_2 - P_1)(V_1 - V_2)} \tag{5.45}$$

avec, si on néglige la pression initiale, [62] :

$$P_2 = \frac{0.5\frac{g}{V_2}((P_1 - P_{H_2})(V_0 - V_2)) + P_{H_2}}{1 - \frac{g}{2V_2}(V_1 - V_2)} \tag{5.46}$$

5.3.5 Comparaison du modèle avec les modèles existants

Le modèle décrit ci dessus apparaît ainsi très simple. Avant de pouvoir l'utiliser, il est important de voir comment il se situe par rapport aux autres modèles déjà existants. La figure 5.6 présente une comparaison entre différents modèles (Kerley, SESAME et modèle de Grüneisen). Les modèles sont comparés pour un choc fort (U_p=22 km/s) et pour un choc plus faible (U_p=8 km/s). Ces deux intensités de choc correspondent à la limite basse (pour U_p<8 km/s, le quartz n'est plus réfléchissant, il perd alors tout son avantage) et la limite haute qui correspond à un des chocs les plus forts réalisés.Pour comparer des chocs de différentes intensités, la différence entre l'Hugoniot symétrique et l'isentrope (ou l'Hugoniot secondaire) a été normalisée par rapport à la pression de choc. Les expressions exactes sont données dans la légende de la figure 5.6.

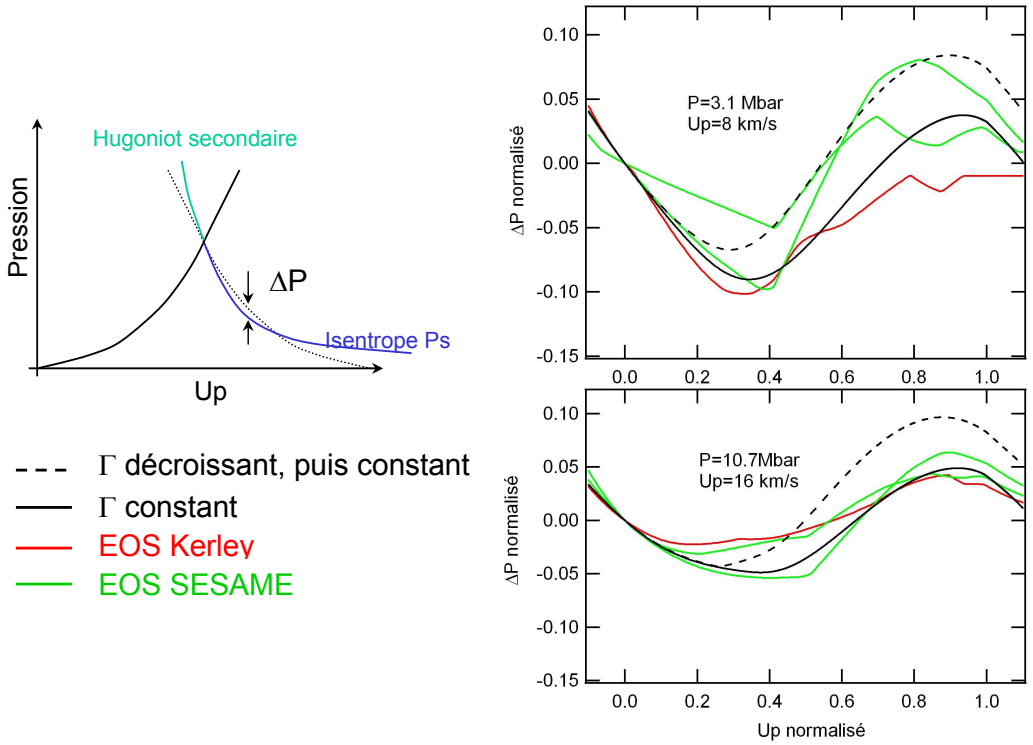


FIG. 5.6 – Comparaison entre le modèle de Grüneisen et diverses tables d'équation d'état. L'échantillon est choqué dans un état P_1=10.7 Mbar et U_{p1}=16 km/s pour la figure du haut et P_1=3.1 Mbar et U_{p1}=8 km/s pour la figure du bas. ΔP représente la différence entre la pression le long de l'Hugoniot symétrique et la pression le long l'isentrope comme illustré sur la figure de gauche. Cette différence est normalisée par rapport à la pression de choc P_1, c'est à dire 10.7 et 3.1 Mbar pour les deux figures respectivement : $\Delta P_{normalized} = \frac{P_H - P_S}{P_1}$. De la même manière U_p est normalisé par rapport à U_{p1} : $U_{pnormalis} = \frac{U_p}{U_{p1}} - 1$. La courbe rouge correspond à l'équation d'état de Kerley et les deux courbes vertes correspondent à des équations SESAME. La courbe noire a été calculée à partir du modèle de Gruneisen avec g constant (=0.66) et la courbe en pointillés avec g constant jusqu'à v=0.17g/cm^3 et croissant après.

On constate qu'en utilisant l'Hugoniot symétrique, on surestime la pression lorsque la vitesse particule finale est proche de la vitesse particule de choc U_{p1} et on sous estime la pression lorsque la vitesse particule finale est grande. Ce comportement est identique pour toutes les équations d'état. Le modèle reproduit ainsi de manière qualitative le comportement général observé lors de la détente. Le modèle de Gruneisen construit à partir d'un coefficient g décroissant, puis constant (courbe pointillée noire) est situé au niveau de la limite haute des différents modèles alors que le modèle construit à partir de

g constant apparaît comme une moyenne des différents modèles. Ce dernier modèle semble ainsi plus adapté. Il reproduit de manière très satisfaisante le comportement du quartz à haute et basse pression.

CQFR : Un modèle de Gruneisen, basé sur l'approximation g(V)=cst, reproduit de manière quantitative le comportement du quartz lors de sa détente. Ce modèle permet ainsi de contrôler l'ensemble des approximations faites. Une détermination expérimentale plus précise de $g(V)$ permettra de diminuer les incertitudes de cette approche dans le futur.

5.3.6 Comment prendre en compte la précompression ?

Même si le quartz est un matériau très dur, la précompression change son volume initial et donc influence son Hugoniot. Pour être le plus précis possible, cet effet doit être pris en compte. La plupart des données existantes sur le quartz ont été obtenues à pression ambiante ce qui correspond à une densité de 2.65 g/cm^3. Pour donner un exemple, le quartz, à une pression de 10 kbar, a une densité de 2.73 g/cm^3 légèrement supérieure à la densité à pression ambiante. L'Hugoniot générée est alors légèrement décalée par rapport à l'Hugoniot principale. Ne pas prendre en compte ce décalage peut entraîner des erreurs supplémentaires.

Différentes études ont été réalisées sur des échantillons de quartz pour des densités allant de 1.15 à 4.31 g/cm^3 [14, 16]. Ce sont, comme on l'a vu précédemment, ces études qui ont permis de déterminer expérimentalement le coefficient de Gruneisen. Lors de ces études, il a été observé que pour des pressions supérieures à 1.5 Mbar, dans la phase fluide, l'Hugoniot ne dépend que de la densité initiale indépendamment de la structure initiale. Dans le plan U$_S$-U$_p$, tous les Hugoniots forment ainsi une série de droites parallèles [15]. En partant de cette hypothèse, on peut normaliser aux hautes pressions les Hugoniots disponibles (alpha quartz à 2.65, 1.75,1.35 g/cm^3 and stichoviste 4.31 g/cm^3) avec un paramètre $\alpha(\rho_0)$ de telle manière que l'ensemble des Hugoniots tombent sur la même courbe, celle du quartz à 2.65 g/cm^3 prise comme référence : $U_S = A + BU_p + \alpha(\rho_0)$. La figure 5.7 illustre ce raisonnement.

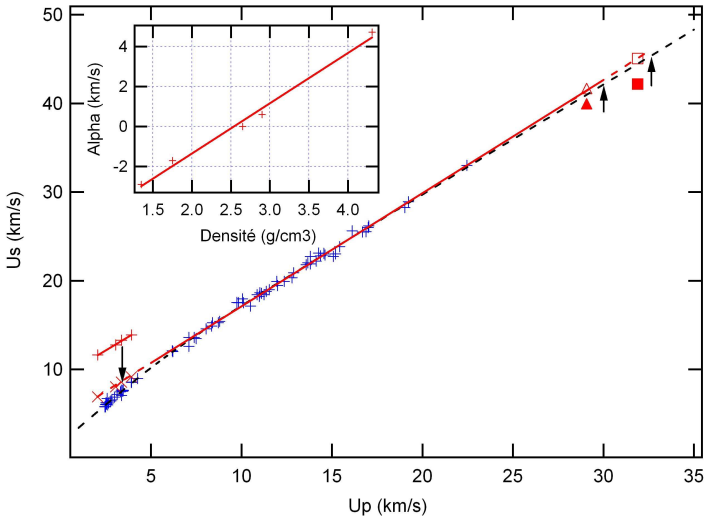


FIG. 5.7 – Correction de l'Hugoniot en fonction de la pression initiale. Les croix bleues sont les valeurs expérimentales obtenues pour le quartz [51]. La ligne rouge solide est un fit linéaire à hautes pressions (U$_p$ > 6.35 km/s). Les symboles solides (cercles, triangles et carrées) sont les données obtenues respectivement pour la stichoviste , le quartz à 1.75 g/cm^3 et le quartz à 1.35 g/cm^3 [14, 17]. Les symboles ouverts sont les même données mais normalisées de manière à tomber sur la droite du quartz à 2.65 g/cm^3. La figure en haut à gauche représente le coefficient de normalisation α appliqué en fonction de la densité initiale. Les croix rouges sont les valeurs obtenues expérimentalement et la ligne rouge représente le fit linéaire obtenu : $\alpha(\rho_0) = 2.4981 * (\rho_0 - 2.65)$

Ainsi en fittant $\alpha(\rho_0)$ par une courbe simple (fit linéaire : $\alpha(\rho_0) = 2.4981 * (\rho_0 - 2.65)$), on obtient une correction analytique qui permet de générer n'importe quelle Hugoniot en fonction de la précompression. Pour vérifier si le modèle est valable, le coefficient de Gruneisen a été calculé à partir de plusieurs Hugoniots générées par cette méthode. Les valeurs obtenues se situent entre 0.55 et 0.8 ce qui est en bon accord avec les valeurs expérimentales de 0.6 et 0.7 [14, 17]. Cela nous a donc permis de valider la méthode et on peut désormais corriger l'Hugoniot principale de manière à prendre en compte la précompression du quartz.

CQFR : Tous les Hugoniots existantes du quartz pour des densités initiales différentes sont ramenées par des coefficients de normalisation α à une seule Hugoniot, l'Hugoniot du quartz à 2.65 g/cm^3. α ne dépend que de la densité initiale et est fitté par une droite linéaire $\alpha(\rho_0)$. Cette correction analytique permet alors de déterminer n'importe quelle Hugoniot à partir de la densité initiale du quartz : $U_S = a + bU_p + \alpha(\rho_0)$.

5.4 Mesure de réflectivité

La réflectivité d'un échantillon est généralement obtenue à partir de l'image VISAR. Le système est calibré avant l'expérience et on peut relier l'intensité du signal VISAR à la réflectivité de l'échantillon. Cependant cette calibration n'est plus exacte pendant le choc car les propriétés optiques de la fenêtre d'observation peuvent être modifiées par un flux de rayons X parasites et d'électrons rapides générés sur le front d'ablation du laser de puissance. Des variations d'intensité sont alors possibles. Dans la pire des situations, on observe parfois une perte d'intensité totale empêchant jusqu'à la détection des sauts de franges. Quantifier cette atténuation est difficile ce qui rend les mesures absolues peu fiables.

L'utilisation du quartz comme référence in-situ permet de résoudre ce problème. Sa réflectivité a été déterminée en fonction de sa vitesse de choc par Hicks et al [44] (figure 5.8).

$$R = 0.0046 + 0.3027 \frac{U_s^{9.73}}{U_s^{9.73} + 16.18^{9.73}} \tag{5.47}$$

Grâce à cette relation, aucune calibration n'est maintenant nécessaire : le quartz est utilisé comme calibration in-situ. Après avoir déterminé la vitesse de choc dans le quartz, l'intensité de l'image VISAR est directement reliée à sa réflectivité. Lorsque le choc est dans le quartz, on a :

$$I_{qz} = I_0 R_{qz} C_{vide/saphir} C_{saphir/chantillon} C_{chantillon/quartz} T \tag{5.48}$$

Les coefficients C prennent en compte le passage à travers les différentes interfaces et T est relié à la fonction de transfert de l'ensemble du système optique. Lorsque le choc est dans l'échantillon, on a :

$$I_{ech} = I_0 R_{ech} C_{vide/saphir} C_{saphir/chantillon} T \tag{5.49}$$

Ce qui donne :

$$\frac{I_{ech}}{I_{qz}} = \frac{R_{ech}}{R_{qz} C_{chantillon/quartz}} \tag{5.50}$$

Connaissant l'indice de réfraction du quartz et de l'échantillon non choqué, on peut estimer $C_{chantillon/quartz}$ qui est pratiquement égale à 1. On a donc finalement :

$$I_{ech} = \frac{I_{qz} R_{ech}}{R_{qz}} \tag{5.51}$$

et T n'a donc plus besoin d'être évolué.

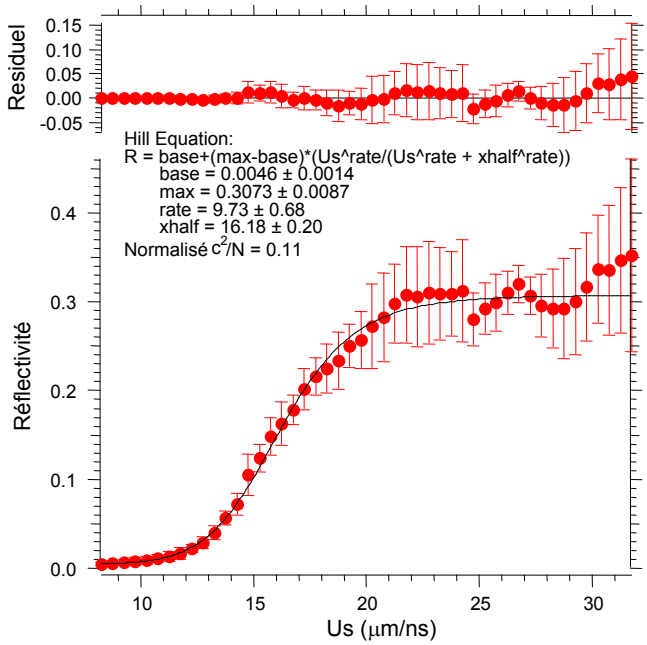


FIG. 5.8 – Evolution de la réflectivité du quartz en fonction de U_S [44].

Rq : On suppose de plus que la différence d'absorption due à la différence entre les chemins optiques lorsque le front de choc est dans le quartz ou dans l'échantillon (différence < 100 μm) est négligeable devant l'atténuation au niveau du saphir de 5 mm.

Il arrive que des variations d'intensité soient générées par les variations d'intensité du laser lui-même. Pour éliminer ces variations, les images VISAR sont normalisées en intensité par rapport à l'image de référence, prise juste avant le tir. Un profil moyen est alors extrait de l'image VISAR et c'est ce profil qui va être utilisé pour déterminer la réflectivité de l'échantillon. (figure 5.9).

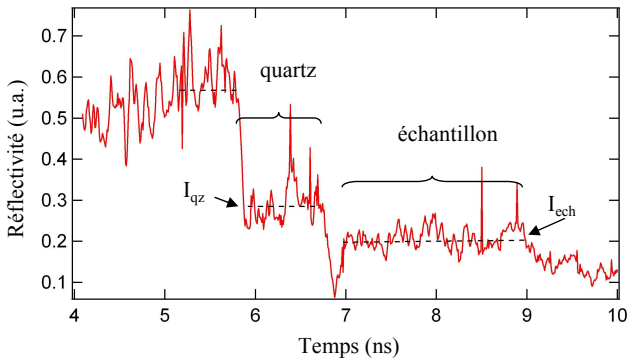


FIG. 5.9 – Profil temporel de l'intensité de l'image VISAR

CQFR : Le quartz sert de référence in-situ dans la cellule. La calibration souvent difficile des diagnostics n'est plus nécessaire. On mesure I_{ech} et I_{qz} à partir de l'image VISAR. R_{qz} est obtenu à partir de la vitesse du choc dans le quartz. On a alors : $I_{ech} = \frac{I_{qz} R_{ech}}{R_{qz}}$.

5.5 Mesure de température

5.5.1 Technique de mesure

Comme nous l'avons souligné précédemment, la température ne peut pas être déduite directement des équations de Rankine-Hugoniot. Il faut donc, pour avoir un ensemble de points (P, V, T) d'équation d'états complet, la mesurer par pyrométrie en même temps que les vitesses de choc.

En général, on mesure l'émission propre de la face arrière de la cible et, avec une hypothèse de corps noir ou de corps gris, on en déduit la température. Cela est possible grâce à la loi de Planck qui relie la température d'un corps à sa lumière émise :

$$I(\lambda, T) = e(\lambda)\frac{2hc^2}{\lambda^5}\frac{1}{e^{\frac{hc}{\lambda kT}} - 1} \tag{5.52}$$

où e(λ) est l'émissivité à la longueur d'onde λ. Pour un corps noir, e(λ)=1 pour toutes les longueurs d'onde.

La mesure du spectre complet est généralement impossible. La mesure de $I(\lambda, T)$ pour un λ, ou un domaine de λ permet cependant de remonter à la température. Il existe plusieurs méthodes de mesure illustrées figure 5.10.

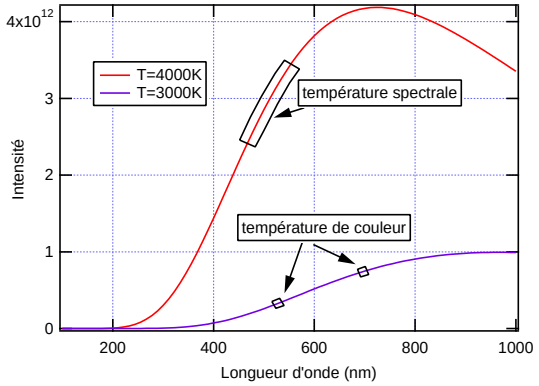


FIG. 5.10 – Radiance du corps noir en fonction de la longueur d'onde. La radiance a été calculée pour deux températures 3000 et 4000K (courbe violette et rouge respectivement).

Pour une mesure de température spectrale, l'émission est mesurée pour un ensemble de longueurs d'ondes. Ayant ainsi un bout de spectre, il suffit de trouver la température qui reproduira au mieux les données expérimentales.

Pour une mesure de température de couleurs, on mesure le rapport entre l'émission à deux longueurs d'onde distinctes. On peut alors tracer l'évolution théorique de ce rapport en fonction de la température et ainsi trouver la température correspondant au rapport expérimental.

Enfin la dernière méthode est celle de température de brillance. On mesure l'émission à une longueur d'onde unique. Il est alors nécessaire de calibrer le système pour pouvoir relier l'émission reçue et la température du corps. Cette dernière méthode demande de bien calibrer le système de mesure. C'est cette méthode qui a été utilisée dans nos expériences.

L'intensité du signal collecté N(θ) depend d'un grand nombre de paramètres :

$$N(\theta) = \frac{S\Omega\Delta t}{k(\lambda_0)}\int_{\Delta\lambda} e(\lambda)B(\lambda,\theta)T(\lambda)\frac{R(\lambda)}{R(\lambda_0)}d\lambda \tag{5.53}$$

S est la surface émettrice, Ω est l'angle solide, Δt le temps d'exposition, k(0) une constante de calibration, e(λ) l'émissivité de l'échantillon e(λ)=1-R(réflectivité) (hypothèse de corps gris), B(λ,θ) la

fonction de planck, T(λ) la fonction de transfert du système optique et R(λ) la réponse spectrale de la photocathode. La difficulté réside dans l'estimation de T(λ). Il faut estimer l'influence des traitements optiques réalisés sur le diamant, l'ouverture de la cellule, l'absorption dans l'enclume,...L'utilisation du quartz comme référence in-situ permet de résoudre toutes ces inconnues.

5.5.2 Utilisation du quartz comme référence in situ

La température du quartz est donnée en fonction de l'intensité du signal par la formule :

$$T = \frac{T_0}{ln(\frac{C}{I} + 1)} \tag{5.54}$$

avec T_0=1.9 eV, C constante de calibration et I=$\frac{nombredecoups}{1-R}$, R étant la réflectivité. Comme nous l'avons dit précédemment la difficulté se situe dans la détermination de la constante de calibration C, reliée à la fonction de transfert de l'ensemble du système.

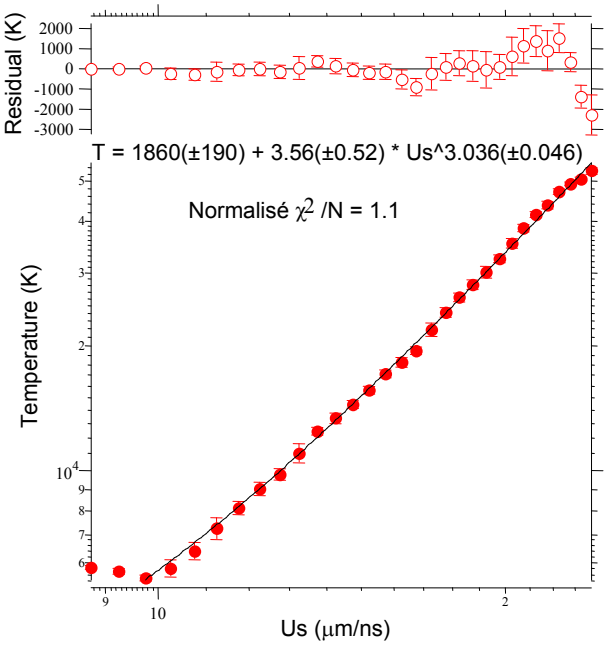


FIG. 5.11 – Evolution de la température en fonction de la vitesse de choc

Hicks et al. [44] ont mesuré la température du quartz en fonction de la vitesse de choc T(U_S) (voir figure 5.11).

$$T = 1860 + 3.56 U_s^{3.036} \tag{5.55}$$

Ainsi connaissant la température de manière indépendante du diagnostic d'émission propre, on peut relier l'intensité I du signal et la température T du quartz. De cette manière on détermine C qui pourra alors être utilisé pour estimer ensuite la température de l'échantillon. On a :

$$\left(\frac{C}{I}\right)_{qz} = e^{\frac{T_0}{T_{qz}}} - 1 \tag{5.56}$$

et

$$\left(\frac{C}{I}\right)_{ech} = e^{\frac{T_0}{T_{ech}}} - 1 \tag{5.57}$$

Comme la constante de calibration est la même pour le quartz et pour l'échantillon (C_{qz}=C_{ech}), on peut réunir les 2 égalités. On obtient alors :

$$\frac{I_{ech}}{I_{qz}} = \frac{e^{\frac{T_0}{T_{qz}}} - 1}{e^{\frac{T_0}{T_{ech}}} - 1} \tag{5.58}$$

soit :

$$T_{ech} = \frac{T_0}{ln\left[\left(e^{\frac{T_0}{T_{qz}}} - 1\right)\frac{I_{qz}}{I_{ech}} + 1\right]} \tag{5.59}$$

avec sans oublier I=$\frac{nombredecoups}{1-R}$, R étant mesuré à partir de l'image VISAR. Un exemple d'image SOP (Self Optical Pyrometer) est présenté figure 5.12. Une moyenne du nombre de coups est prise sur l'ensemble du signal.

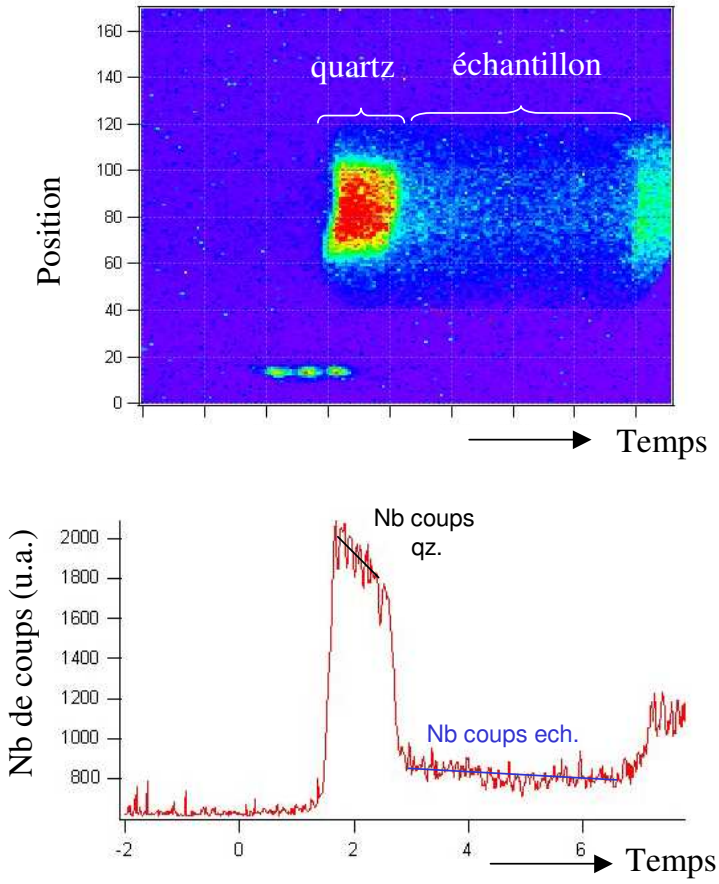


FIG. 5.12 – Signal d'émission propre collectée par le pyromètre. La figure du haut présente le signal directement collecté par le diagnostic et la figure du bas présente le profil moyen de ce signal.

CQFR : De la même manière que pour la mesure de réflectivité, le quartz sert de référence in-situ. Les calibrations ne sont plus nécessaires. La température du quartz est déterminée grâce à sa vitesse de choc et reliée ensuite à l'intensité du signal reçu. Connaissant alors la relation entre le nombre de coups reçus et la température, on trouve la température de l'échantillon à partir de l'intensité du signal correspondant.

5.6 Estimation des barres d'erreur

Les premières mesures de choc laser, en particulier sur l'Hugoniot du D_2, ont été l'objet d'une vive controverse. Établir la fiabilité des mesures dynamiques par choc laser demande donc de maîtriser les erreurs systématiques et de réduire les barres d'erreur. Une estimation correcte de ces barres d'erreur est donc très importante. Nous présentons ci-dessous comment celles-ci ont été déterminées pour chaque mesure.

5.6.1 Erreur sur la vitesse de choc

L'erreur sur la vitesse de choc dans le quartz et dans l'échantillon est calculée lors de l'analyse de l'image VISAR. L'analyse de l'image, réalisée par transformée de Fourier, permet de déterminer la vitesse de choc au niveau de l'interface quartz/échantillon. On obtient alors un profil de vitesse pour chaque VISAR comme illustré sur la figure 5.13.

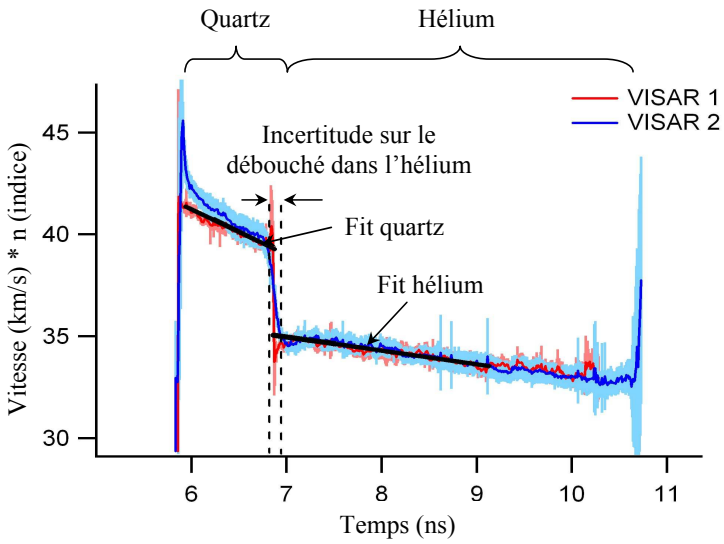


FIG. 5.13 – Estimation des barres d'erreur sur les vitesses de choc

La vitesse est ajustée linéairement pour le quartz et l'échantillon (lignes noires sur la figure 5.13) : $v = a + bt$. Le fit est réalisé avec les deux VISARS en même temps. Un poids différent, égal à la déviation standard du signal, est attribué à chaque VISAR. De cette manière, on prend en compte, en même temps, l'écart entre les deux VISAR et les déviations standards des signaux eux-mêmes.

La vitesse de choc à l'interface dépend des deux coefficients du fit : a+σ_a et b+σ_b et de l'estimation du temps du débouché : $v_{interface}$=f(a,b,t)=a+$bt_{debouche}$. Si on considère que la covariance entre chaque terme est négligeable, la déviation standard sur la vitesse peut être exprimée de manière simple [63] :

$$\sigma_v^2 = \sigma_a^2 \left(\frac{\partial v}{\partial a}\right)^2 + \sigma_b^2 \left(\frac{\partial v}{\partial b}\right)^2 + \sigma_t^2 \left(\frac{\partial v}{\partial t}\right)^2 \tag{5.60}$$

ce qui donne :

$$\sigma_v^2 = \sigma_a^2 + \sigma_b^2 t^2 + \sigma_t^2 b^2 \tag{5.61}$$

Lorsque la procédure d'ajustement ne fonctionne pas correctement les erreurs sont déterminées directement par l'utilisateur à partir du profil. A cette première erreur, il faut ajouter l'erreur provenant de la méthode en elle-même qui correspond à 5% de la plus petite VPF (vitesse par frange) [39]. Dans notre cas, VPF=6.985km/s dans le vide, ce qui donne :

$$\sigma_1 = \frac{0.05 * 6.985}{n} \tag{5.62}$$

n étant l'indice du milieu. Ainsi même si l'image était parfaite, l'erreur ne pourrait pas être plus petite que σ_1. L'erreur finale est donc :

$$\sigma_v^2 = \sigma_a^2 + \sigma_b^2 t^2 + \sigma_t^2 b^2 + \left(\frac{0.349}{n}\right)^2 \tag{5.63}$$

Les erreurs obtenues ainsi sur la vitesse sont de l'ordre de 1 à 2%.

5.6.2 Erreur sur la pression P et la vitesse particule U_p

Les erreurs sur la pression et sur la vitesse particule ne peuvent pas être déterminées simplement à partir de formules. Elles sont déterminées en propageant l'erreur sur les vitesses de choc du quartz et de l'échantillon dans la méthode de désadaptation d'impédance (figure 5.14). Les droites pointillées

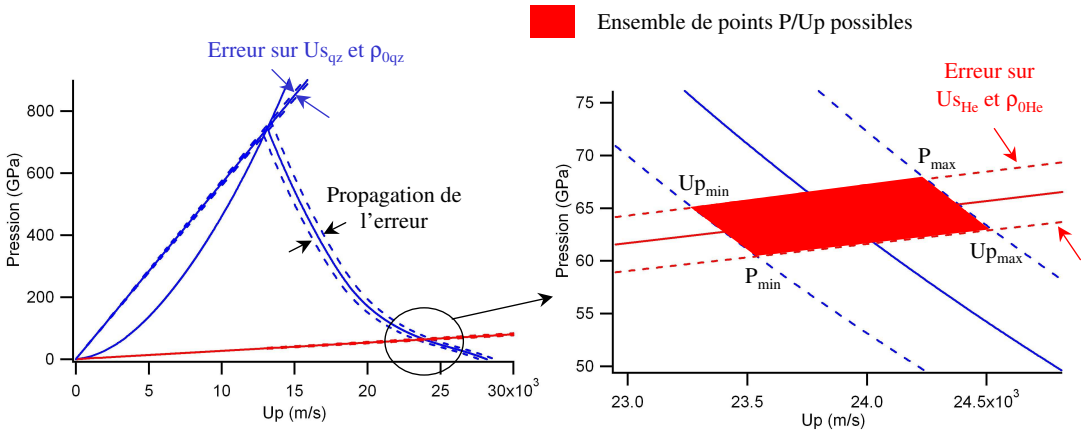


FIG. 5.14 – Propagation de l'erreur dans la méthode désadaptation d'impédance.

représentent les erreurs sur les vitesses de choc et mais aussi sur les densités initiales. En effet, la pente de la droite est définie par : $\rho_0 U_s$. La droite inférieure a donc une pente égale à $\rho_{0min}(U_s - \sigma_{U_s})$ et la droite supérieure une pente égale à $\rho_{0max}(U_s + \sigma_{U_s})$. L'erreur sur le quartz entraîne ainsi plusieurs pressions de choc possibles. L'isentrope de détente est donc encadrée par deux isentropes secondaires (courbes décroissantes pointillées bleues) correspondant à la pression maximale et minimale de choc du quartz. L'intersection entre les deux isentropes extrêmes et les deux droites extrêmes de l'échantillon définit un ensemble de points P,U_p possibles (zone rouge sur la figure 5.14 de droite). Les erreurs sur la pression et sur la vitesse particule sont déterminées en prenant les extrêmes de cette zone.

Calcul Monte Carlo La méthode précédente permet, en déterminant les extrêmes de P et Up, de bien couvrir toute la zone possible accessible. Cependant, elle peut conduire à des barres d'erreur peu réalistes. En effet, si les erreurs utilisées représentent des écarts maximum et minimum et non des déviations standards, la probabilité qu'une de ces valeurs extrêmes soit atteinte est faible par rapport à

une autre valeur plus proche de la valeur nominale. Les valeurs possibles ne sont donc pas réparties de manière uniforme. Ces barres d'erreur ne rendent ainsi pas forcément bien compte de la réalité. Pour mieux estimer ces erreurs, un calcul Monte Carlo a été appliqué.

L'idée est de générer l'ensemble des résultats possibles à partir d'un ensemble de couples de valeurs Us_{quartz} et $Us_{chantillon}$ répartis suivant une distribution gaussienne centrée autour de la valeur nominale mesurée et de déviation standard σ_{Us}. La difficulté est dans la détermination de σ_{Us}. Si l'erreur mesurée e_{Us} est une déviation standard, on peut directement générer les points à partir de cette valeur :

$$Us = Us_{mesure} \pm e_{Us} \tag{5.64}$$

Si l'erreur mesurée e_{Us} est une valeur maximale ou minimale, elle n'est pas représentative de la distribution des vitesses. L'utiliser comme déviation standard entraîne alors des barres d'erreur finales très larges et non réalistes. Pour une distribution gaussienne, 90% des valeurs possibles sont comprises entre -3σ et +3σ. On peut donc générer une distribution représentative en utilisant une déviation standard égale à $e_{Us}/3$, soit :

$$Us = Us_{mesure} \pm \frac{e_{Us}}{3} \tag{5.65}$$

Les différentes valeurs possibles pour la densité initiale sont déterminées de la même manière :

$$\rho_0 = \rho(P_0) \pm \frac{(\rho(P_0 + 0.2kbar) - \rho(P_0 - 0.2kbar))/2}{3} \tag{5.66}$$

Ainsi pour chaque ensemble de points initiaux Us_{quartz}, $Us_{chantillon}$ et ρ_0, on génère un ensemble de solutions P et ρ_{final}. Les valeurs minimales et maximales sont alors calculées en prenant la moyenne de l'ensemble des points $\pm 3\sigma$. Ainsi les barres d'erreur présentées représentent 90% de l'ensemble des valeurs possibles. Les barres d'erreur sont ensuite calculées par rapport à la valeur nominale, pouvant être différente de la valeur moyenne. La figure 5.15 illustre un résultat ainsi obtenu. On voit que prendre

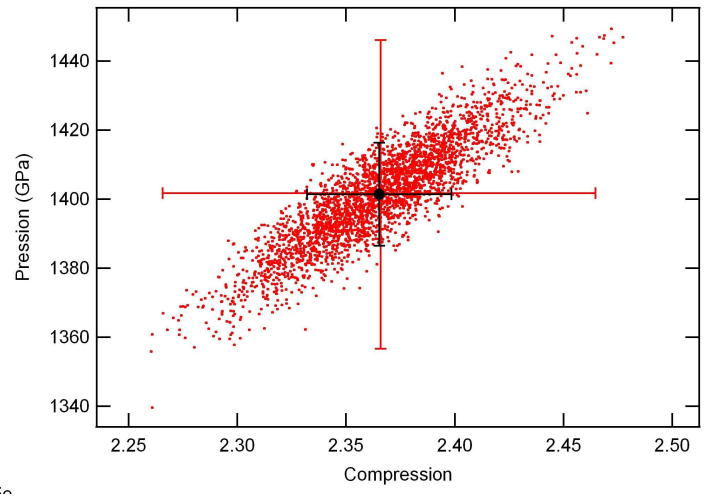


FIG. 5.15 – Calcul d'erreur Monte Carlo : les points rouges représentent un ensemble de valeurs générées possibles. La valeur moyenne est représentée par le point noir et les déviation standards par les barres noires. Les barres d'erreur utilisées sont les barres rouges correspondant à 3 fois la déviation standard. Elle sont centrées sur le point nominal.

3σ comme barre d'erreur permet de bien de couvrir l'ensemble des points.

5.6.3 Erreur sur la réflectivité

La réflectivité est obtenue à partir de l'image VISAR. L'amplitude A de l'image est déterminée par transformée de Fourier en même temps que la phase. On a :

$$A = \sqrt{Re(D)^2 + Im(D)^2} \tag{5.67}$$

où D est défini plus haut (voir chapitre sur le VISAR). Elle est ensuite normalisée par rapport à l'image de référence pour prendre en compte les variations dues à l'instrumentation. Une image typique est présentée figure 5.16.

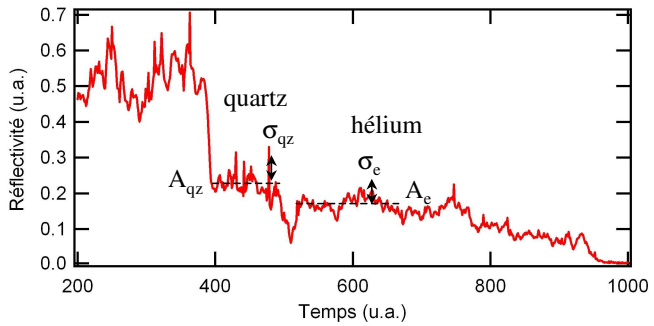


FIG. 5.16 – Profil de réflectivité

Il faut maintenant relier cette amplitude à une valeur de réflectivité. La réflectivité du quartz est déterminée comme nous venons de le voir par rapport à sa vitesse de choc. L'erreur sur cette réflectivité $\sigma_{R_{qz}}$ est calculée à partir des déviations standards des coefficients du fit la courbe (figure 5.8).

$$R_{echantillon} = \frac{R_{qz} A_{echantillon}}{A_{qz}} \tag{5.68}$$

En négligeant la covariance, on obtient :

$$\sigma^2_{R_e} = \sigma^2_{R_{qz}} \left(\frac{A_{ech}}{A_{qz}}\right)^2 + \sigma^2_{A_{qz}} \left(\frac{R_{qz}}{A_{qz}}\right)^2 + \sigma^2_{A_e} \left(\frac{R_{qz} A_e}{A_e^2}\right)^2 \tag{5.69}$$

Sur la figure 5.16, les lignes noires pointillées sont la moyenne du signal prise sur la zone définie par la longueur de cette même ligne. Elles définissent ainsi A_{qz} et A_e. $\sigma_{A_{qz}}$ et σ_{A_e} représentent l'écart moyen par rapport à cette moyenne. Les erreurs sur la réflectivité sont en général autour de 30%.

5.6.4 Erreur sur la température

La procédure pour obtenir l'erreur sur la température est très similaire à celle utilisée pour l'erreur sur la réflectivité. Le profil de l'image SOP est fitté ce qui permet de déterminer $\mathrm{I}_{count_{qz}}$, I_{count_e}, $\sigma_{count_{qz}}$ et σ_{count_e}. Ces intensités sont ensuite corrigées avec la réflectivité. On a donc I_{qz}, I_e, σ_{qz} et σ_e. La température est donnée par (voir paragraphe sur la mesure de température) :

$$T_e = \frac{T_0}{\ln((e^{\frac{T_0}{T_{qz}}} - 1)\frac{I_{qz}}{I_e} + 1)} \tag{5.70}$$

On a donc :

$$\sigma^2_{T_e} = \sigma^2_{T_{qz}} \left(\frac{\partial T_e}{\partial T_{qz}}\right)^2 + \sigma^2_{I_{qz}} \left(\frac{\partial T_e}{\partial I_{qz}}\right)^2 + \sigma^2_{I_e} \left(\frac{\partial T_e}{\partial I_e}\right)^2 \tag{5.71}$$

On a :

$$\frac{\partial T_e}{\partial T_{qz}} = \frac{T_0}{\left(\ln((e^{\frac{T_0}{T_{qz}}}-1)\frac{I_{qz}}{I_e}+1)\right)^2}\frac{1}{(e^{\frac{T_0}{T_{qz}}}-1)\frac{I_{qz}}{I_e}+1}\frac{T_0}{T_{qz}^2}\frac{I_{qz}}{I_e}e^{\frac{T_0}{T_{qz}}} \tag{5.72}$$

$$\frac{\partial T_e}{\partial I_{qz}} = \frac{-T_0}{\left(\ln((e^{\frac{T_0}{T_{qz}}}-1)\frac{I_{qz}}{I_e}+1)\right)^2}\frac{1}{(e^{\frac{T_0}{T_{qz}}}-1)\frac{I_{qz}}{I_e}+1}\frac{1}{I_e}(e^{\frac{T_0}{T_{qz}}}-1) \tag{5.73}$$

$$\frac{\partial T_e}{\partial I_e} = \frac{-T_0}{\left(\ln((e^{\frac{T_0}{T_{qz}}}-1)\frac{I_{qz}}{I_e}+1)\right)^2}\frac{1}{(e^{\frac{T_0}{T_{qz}}}-1)\frac{I_{qz}}{I_e}+1}\frac{-I_{qz}}{I_e^2}(e^{\frac{T_0}{T_{qz}}}-1) \tag{5.74}$$

$\sigma_{T_{qz}}$ est obtenu à partir du fit de $T_{qz}(U_{sqz})$. Les erreurs sur la température sont autour de 10%.

CQFR : Les erreurs sur les vitesses de choc U_S sont obtenues à partir de l'image VISAR. Elles sont ensuite propagées avec l'erreur sur la densité initiale dans la méthode de désadaptation d'impédance. On obtient alors les erreurs sur la pression P et sur la vitesse particule U_p. Les erreurs sur la réflectivité et sur la température sont calculées à partir des erreurs sur les coefficients des fits du quartz $R(U_s)$ et $T(U_s)$ et des déviations standards du signal des images VISAR et SOP.

Chapitre 6

Les lasers de puissance

Sommaire

6.1 Génération d'une onde de choc par laser : interaction laser matière 107
6.1.1 Propagation d'une onde électromagnétique dans un plasma 108
6.1.2 Zone d'interaction 109
6.1.3 Zone de conduction 110
6.2 Simulations hydrodynamiques 111
6.2.1 Code Lagrangien 111
6.2.2 Equations d'état utilisés 112
6.2.3 Dimensionnement de l'expérience 113
6.2.4 Analyse des résultats post-expérience 114
6.3 Lasers utilisés 118
6.3.1 OMEGA 118
6.3.2 LULI 2000 120

Dans tout ce que nous avons vu précédemment, nous avons supposé que le choc était déjà formé. Dans ce chapitre, nous allons nous intéresser à la génération expérimentale du choc, soit l'interaction du laser de puissance avec la matière.

6.1 Génération d'une onde de choc par laser : interaction laser matière

On peut décomposer l'interaction d'un laser avec la matière en deux parties : la première étape qui dure quelques picosecondes pendant laquelle un plasma se forme et la deuxième étape pendant laquelle l'onde électromagnétique du laser interagit avec le plasma ainsi créé.

Les premiers électrons, à l'origine de la formation du plasma, sont produits soit par effet thermo-électronique sur les inclusions et impuretés dans le cas d'impulsions nanoseconde, soit par ionisation multiphotonique (flux de photons >10^{32} photons.cm^{-2}s^{-1}) en régime picoseconde. Ils sont ensuite accélérés par le champ électrique de l'onde laser [64] :

$$E(V/cm) = 20.I(W/cm^2)^{0.5} \tag{6.1}$$

Ils ionisent alors par choc d'autres atomes, créant de nouveau électrons qui, une fois accélérés, peuvent à leur tour ioniser d'autres atomes. Il y a alors un phénomène d'avalanche avec une augmentation exponentielle de la densité électronique.

Le laser est alors absorbé dès l'apparition de cette densité électronique. Le plasma créé est alors chauffé, ionisé et mis en expansion par l'énergie laser. Cette expansion rapide induit par effet fusée une onde de choc dans la cible. Nous allons nous intéresser plus en détails aux mécanismes mis en jeu lors de cette interaction entre le laser et le plasma.

6.1.1 Propagation d'une onde électromagnétique dans un plasma

On considère un champ électrique E orienté suivant l'axe des x et se propageant suivant l'axe z. On peut alors écrire de manière simple les équations de Maxwell sous la forme :

$$\frac{\partial E_x}{\partial z} = \frac{\partial B_y}{\partial t} \tag{6.2}$$

$$\frac{\partial B_y}{\partial z} = \mu J + \frac{1}{c^2}\frac{\partial E_x}{\partial t} \tag{6.3}$$

J représente le courant induit par le mouvement des électrons en présence du champ électrique E. Ils oscillent suivant l'axe des x et sont déviés par les ions. Leur équation du mouvement en fonction de leur vitesse suivant l'axe des x peut s'écrire sous la forme [64] :

$$m\frac{du}{dt} + m\nu_{ei}u = -eE \tag{6.4}$$

où ν_{ei} est la fréquence de collision électron-ion et est introduite dans l'équation du mouvement dans un terme de friction.

Connaissant alors le mouvement des électrons, u, on peut calculer le courant $J = N_e eu$ et résoudre les équations de Maxwell en cherchant une solution de la forme $\overrightarrow{E} = E\overrightarrow{e_x}e^{i(kz+\omega t)}$.

On trouve alors la relation de dispersion suivante :

$$k^2 = \frac{\omega^2}{c^2}\left(1 - \left(\frac{\omega_p^2}{\omega^2 + \nu_{ei}^2}\right)\left(1 + i\frac{\nu_{ei}}{\omega}\right)\right) \tag{6.5}$$

avec $\omega_p^2 = \frac{N_e e^2}{m\epsilon_0}$, N_e densité électronique, e charge d'un électron, m masse d'un électron, c vitesse de la lumière dans le vide et ϵ_0 permissivité dans le vide. ω_p, appelée fréquence de plasma, représente le mode propre fondamental d'oscillation des charges dans le plasma. Si on déplace les électrons d'une petite distance, ils sont soumis à une force de rappel due à la présence de l'ion qui va les faire osciller à la fréquence ω_p.

Il est d'abord important de remarquer que pour $\nu_{ei} \ll \omega$ la relation de dispersion se simplifie :

$$k^2 = \frac{\omega^2}{c^2}\left(1 - \left(\frac{\omega_p^2}{\omega^2}\right)\right) \tag{6.6}$$

L'onde laser ne va pouvoir se propager que pour des fréquences supérieures à ω_p. On peut alors définir la densité électronique correspondante, appelée densité critique :

$$N_c = \frac{m\epsilon_0\omega^2}{e^2} \tag{6.7}$$

Le laser rencontre une densité croissante d'électrons jusqu'à la cible. Il va se propager jusqu'à atteindre la densité critique où il sera alors totalement réfléchi. Tous les phénomènes d'interaction laser-plasma se produisent donc dans les régions où $N < N_c$.

$$N_c \simeq 10^{21} \left(\frac{1.06\mu m}{\lambda} \right)^2 \tag{6.8}$$

Avec une longueur d'onde de 352 nm qui correspond à la longueur d'onde utilisée, N_c=9.10^{21} électrons/cm^3.

Cette densité va faire apparaître deux principales zones : (voir figure 6.1)

-$N < N_c$:cette zone appelée couronne ou zone d'interaction s'étend de la densité critique jusqu'à la limite du plasma loin de la cible. C'est la zone dans laquelle l'énergie va être déposée grâce à des mécanismes d'absorption et d'interaction.

-$N > N_c$: c'est la zone dense ou zone de conduction. Elle s'étend de N_c à la cible. C'est dans cette zone que l'énergie est transportée de la couronne vers le solide, et que la matière est ablatée et chauffée.

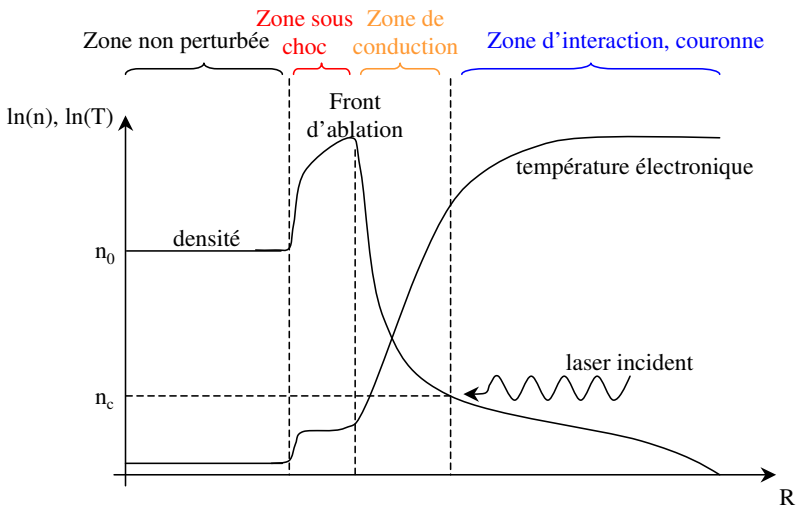


FIG. 6.1 – Evolution de la température et de la densité lors de l'interaction laser/matiére.

6.1.2 Zone d'interaction

Deux principaux mécanismes interviennent.

Absorption collisionnelle

Aussi appelé, Bremsstrahlung inverse, ce processus peut être vu de plusieurs manières. La manière la plus simple est de voir cela comme un processus à 3 particules. Un électron, accéléré par le champ laser, rentre en collision avec un ion et absorbe un photon, d'où le nom de Bremsstrahlung inverse. Une autre approche serait une approche plus ondulatoire. Le champ électrique incident du laser fait osciller les électrons libres. Cette énergie dirigée suivant le mouvement des électrons devient aléatoire lors des collisions entre les électrons et les ions. En d'autres termes, l'énergie incidente entraîne l'apparition de courants d'électrons qui, soumis à la resistance des collisions ions-électrons, "chauffe" le plasma.

Pour comprendre ce phénomène et le quantifier, on peut revenir à la relation de dispersion 6.5 et la développer au premier ordre pour $\nu_{ei} \ll \omega$.

$$\left(\frac{kc}{\omega} \right)^2 = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2} + i \frac{\nu_{ei}}{\omega} \frac{\omega_p^2}{\omega^2} \tag{6.9}$$

Soit :

$$k \simeq \frac{\omega}{c}\left(1-\frac{\omega_p^2}{\omega}\right)^{\frac{1}{2}}\left[1+i\left(\frac{\nu_{ei}}{2\omega}\right)\left(\frac{\omega_p^2}{\omega^2}\right)\frac{1}{1-\frac{\omega_p^2}{\omega^2}}\right] \tag{6.10}$$

Le coefficient d'absorption, a, est déterminé par la partie imaginaire de k. Ce qui donne :

$$a = 2Im(k) \simeq \frac{\nu_{ei}}{c}\left(\frac{\omega_p^2}{\omega^2}\right)\left(1-\frac{\omega_p^2}{\omega^2}\right)^{-\frac{1}{2}} \tag{6.11}$$

Si l'on remplace alors ν_{ei}, la fréquence de collision electron-ion par une expression explicite, on trouve [65, 66, 59, 64] pour le coefficient d'absorption a :

$$a \propto \frac{ZN_e^2 ln\Lambda}{\omega^2(kT)^{3/2}\left(1-\frac{N_e}{N_c}\right)^{1/2}} \tag{6.12}$$

où $ln\Lambda = ln\left[12\pi\frac{(\varepsilon_0 kT)^{3/2}}{N_i^{1/2}Z^2e}\right]$

On peut voir d'après 6.12 que l'absorption diminue avec la température et elle sera maximum plus on se rapproche de la densité critique N_c. Le gradient de densité joue donc un rôle important quant à l'absorption de l'énergie. Un gradient raide va diminuer la zone d'absorption et donc son efficacité.

Absorption résonante

Lorsque la lumière arrive sur un plasma spatialement inhomogène, un champ électrique intense est généré au voisinage de ce point et se poursuit par une onde évanescente vers la cible. Ce champ électrique va faire apparaître une densité de charge donnée par [64] :

$$\rho \propto \frac{\overrightarrow{E}\overrightarrow{\nabla N_e}}{1-\frac{N_e}{N_c}} \tag{6.13}$$

Si la lumière arrive avec un angle non nul sur le gradient de densité du plasma, soit $E.\nabla E \neq 0$, il va apparaître d'après 6.13 une densité de charges importantes au voisinage de N_c. Ces charges vont osciller à la fréquence ω et rentrer en résonnance avec la fréquence ω_p du plasma.

Il a été montré que l'absorption résonante reste négligeable devant l'absorption collisionnelle pour des intensités laser de l'ordre de [ref] :

$$I(W/cm^2) < \frac{10^{14}}{\lambda^2(\mu m)} \tag{6.14}$$

ce qui est le cas de nos expériences.

6.1.3 Zone de conduction

Toute l'énergie absorbée dans la zone d'interaction est donc transportée vers la cible. L'essentiel de ce transport de chaleur est dû aux électrons [64] p26. La matière chauffée se détend et exerce par effet fusée une pression très importante dans le solide entraînant l'apparition d'une onde de choc qui se dirige vers l'intérieur du solide. Mora [67], grâce à un modèle hydrodynamique, a relié la pression générée dans le solide en fonction de l'intensité du laser.

$$P_a(Mbar) \simeq 11.6\left(\frac{I(W.cm^{-2})}{10^{14}}\right)^{3/4}\lambda^{-1/4}(\mu m)\left(\frac{A}{2Z}\right)^{7/16}\left(\frac{Z^*\tau(ns)}{3.5}\right)^{-1/8} \tag{6.15}$$

où Z^* est le degré moyen d'ionisation et τ la durée du pulse. Cette expression a été déterminée pour une expansion plane et est valable lorsque l'absorption par Bremsstrahlung inverse est très importante. Cela équivaut à avoir une intensité inférieure à une intensité limite $I < I^*$, I^* étant donnée par [67].

CQFR : Le laser apporte à la cible une grande quantité d'énergie en un temps très court. La matière en contact direct avec le laser est alors très rapidement chauffée et expulsée vers l'arrière. Par simple effet fusée, une augmentation rapide de la pression (onde de choc) est générée vers l'avant de la cible.

Du rayonnement X et des électrons rapides sont générés lors de ce processus. Plus le matériau aura un Z élevé, plus il y aura de rayonnement produit.

6.2 Simulations hydrodynamiques

Les simulations numériques permettent d'estimer différents paramètres comme le temps de transit du choc, le préchauffage ou encore l'atténuation de la vitesse. Toutes les simulations ont été réalisées avec le code CHIVAS développé par Alain Decoster. Un code hydrodynamique doit être capable de décrire trois principaux phénomènes : l'interaction laser-matière, les transferts énergétiques et enfin l'hydrodynamique des particules. L'interaction laser matière dont les principaux éléments ont été rappelés dans le paragraphe précédent va déterminer la formation du choc et son intensité. Le code doit alors être capable de modéliser la matière hors équilibre thermodynamique. Il faut ensuite traiter les transferts énergétiques comme la conduction thermique et les transferts radiatifs. Le milieu est alors modifié par cet apport d'énergie et il est mis en mouvement. Traiter l'hydrodynamique du milieu est donc indispensable. On peut inclure dans ce traitement, le problème d'équation d'état qui va définir la pression, la densité et la température du milieu en fonction des conditions extérieures. Nous ne rentrerons pas en détails sur le fonctionnement en lui même du code, mais nous en décrirons les grandes lignes.

6.2.1 Code Lagrangien

Il existe pour les codes hydrodynamiques deux grandes familles : les codes Lagrangiens et les codes Eulériens. CHIVAS est un code lagrangien monodimensionnel. Nous avons déjà vu, mais sans le préciser, cette différence lorsque nous avons établi les équations dynamiques. Une approche Lagrangienne consiste à suivre une particule ou unité de masse et à se déplacer avec. Une approche Eulérienne consiste à se placer en un point fixe et à regarder ce qui passe devant ce point. Les deux variables indépendantes pour le premier cas sont le temps et la masse alors que pour le second, c'est la position et le temps. Voyons comment relier ces deux approches.

Nous avons établi les équations dynamiques grâce à une approche eulérienne. Toutes les équations sont établis en fonction de x et t. Rappelons ces équations :

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \overrightarrow{\nabla}.\rho\overrightarrow{u} = 0 \tag{6.16}$$

$$\frac{\partial \overrightarrow{u}}{\partial t} + \overrightarrow{u}.\overrightarrow{\nabla}\overrightarrow{u} = -\frac{1}{\rho}\overrightarrow{\nabla}p \tag{6.17}$$

Le code utilisé étant monodimensionnel, on ne raisonnera que à une dimension. On considère donc un fluide qui se déplace vers les x positifs. On choisit un élément de fluide de masse dm tel que :

$$dm = \rho dx \tag{6.18}$$

Réécrivons l'équation 6.16 :

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x}(\rho u) = \frac{\partial \rho}{\partial t} + u\frac{\partial \rho}{\partial x} + \rho\frac{\partial u}{\partial x} = \frac{D\rho}{Dt} + \rho\frac{\partial u}{\partial x} = 0 \tag{6.19}$$

avec la notation 1.6. On peut alors montrer en utilisant 1.6, 6.18 et 6.19 que :

$$\frac{Dv}{Dt} = \frac{\partial u}{\partial m} \tag{6.20}$$

Nous avons choisi de travailler avec les coordonnées lagrangiennes. On se place donc dans le référentiel de la particule dans lequel il n'y a pas de mouvement. On peut donc remplacer $\frac{D}{Dt}$ par $\frac{\partial}{\partial t}$. Ce qui donne :

$$\frac{\partial v}{\partial t} = \frac{\partial u}{\partial m} \tag{6.21}$$

On peut faire le même raisonnement et montrer que l'équation de conservation du moment peut se mettre sous la forme :

$$\frac{\partial u}{\partial t} = -\frac{\partial p}{\partial m} \tag{6.22}$$

La différence entre les deux types d'équations est rappelé dans le tableau 6.1.

	Euler	Lagrange
conservation de la masse	$\frac{D\rho}{Dt} = -\rho\frac{\partial u}{\partial x}$	$\frac{\partial v}{\partial t} = \frac{\partial u}{\partial m}$
conservation du moment	$\frac{Du}{Dt} = -\frac{1}{\rho}\frac{\partial p}{\partial x}$	$\frac{\partial u}{\partial t} = -\frac{\partial p}{\partial m}$

TAB. 6.1 – Comparaison entre le système Eulérien et Lagrangien

Un système Lagrangien à une dimension est très simple à exécuter dans un code et très rapide pour être exécuté. Cependant il devient très compliqué pour des géométries supérieures à 1.

Dans un code lagrangien, l'espace est donc découpé en mailles dont la taille est variable mais la masse est constante. Dans un code eulérien, la taille de la maille serait fixe, mais sa masse varierait. Ainsi pour chaque maille et à chaque pas de temps, toutes les équations du système (hydrodynamique, transport chaleur,...) sont résolues. Il est alors toujours nécessaire de trouver un compromis entre le nombre de mailles et le nombre de pas de temps pour avoir une description précise en un temps de calcul raisonnable.

6.2.2 Equations d'état utilisés

Il existe un système externe de générateur d'équations d'état appelé NOHEL. Ce système est intégré à CHIVAS et permet d'avoir à chaque pas des informations comme la pression, la densité ou même l'ionisation. Pour nos calculs, nous avons remplacé ces équations par des equations SESAME. Le but de ce changement était de pouvoir intégrer des équations de systèmes composés comme le quartz, non disponible dans les bibliothèques NOHEL.

Les tables SESAME sont adaptées pour des systèmes uniquement à l'ETL (Équilibre Thermodynamique Local) alors que les tables NOHEL sont également valables hors ETL. Les tables SESAME ne sont donc pas adaptées pour les zones d'interaction directe du laser avec la matière, zones fortement hors ETL. Par contre, étant plus récentes et basées sur des données expérimentales, elles donnent des résultats plus proches de la réalité dans les zones à l'ETL. Ainsi pour le plastique, l'or et l'aluminium, zones susceptibles d'être hors ETL, les tables NOHEL ont été choisies, alors que pour le quartz, le diamant, l'hydrogène ou l'hélium, les tables SESAME ont été utilisées.

6.2.3 Dimensionnement de l'expérience

6.2.3.1 Influence de l'intensité laser sur le temps de transit dans le diamant

Une donnée indispensable pour préparer la chaîne de mesure est l'estimation du temps de débouché du choc dans le matériau de référence. En effet, chaque instrument a une fenêtre temporelle finie. Pour observer ce que l'on souhaite, il faut donc bien régler les retards à donner à chaque diagnostic par rapport à l'origine des temps. En général, ce temps de référence t_0 correspond à un temps juste avant le déclenchement du laser.

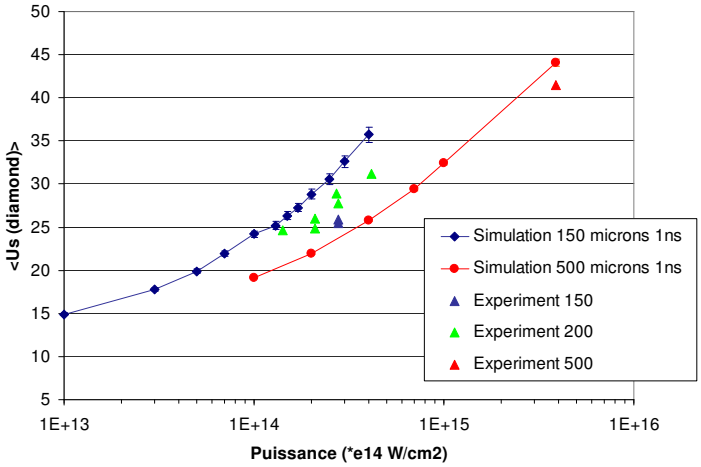


FIG. 6.2 – Evolution de la vitesse moyenne du choc dans le diamant en fonction de l'intensité laser. Les courbes bleues et oranges représentent les simulations obtenues avec une impulsion laser de 1ns et un diamant d'une épaisseur de 100 et 500 microns respectivement. Les différents points sont les points expérimentaux obtenus avec des impulsions de 1ns et des épaisseurs de diamant de 100, 150, 200 et 500 microns.

La figure 6.2 présente la vitesse moyenne du choc dans le diamant en fonction de l'intensité laser pour différentes épaisseurs de diamant. Pour une même intensité laser, la vitesse moyenne est plus faible dans un diamant de 500 microns que dans un diamant de 100 microns. Le choc n'est donc pas constant. Il s'atténue. S'il est nécessaire d'utiliser des gros diamants pour obtenir une précompression importante, la puissance laser nécessaire pour une même vitesse dans le diamant peut alors être multipliée par 3 ou plus.

Les simulations ont tendance à surestimer la vitesse réelle. En effet, une mauvaise focalisation du laser, un centrage non parfait sont autant de facteurs qui vont diminuer la conversion de l'énergie laser et donc l'amplitude de l'onde choc. Il n'est pas rare d'ajouter un facteur d'abattement à l'intensité laser de manière à mieux reproduire l'expérience. Ces simulations sont utiles au début de la campagne d'expériences, mais rien ne remplace, au fur et à mesure des tirs, la mesure de la vitesse réelle dans le diamant qui ensuite par extrapolation peut permettre de prévoir le temps de transit réel pour d'autres épaisseurs et d'autres intensités.

6.2.3.2 Influence de la forme de l'impulsion

La forme de l'impulsion laser est importante car déposer la même quantité d'énergie en 1ns ou 2 ns n'est pas forcément équivalent. La figure 6.3 illustre ce problème. Un choc est généré avec une intensité

laser de 1e15 W/cm2 en 1ns et avec une intensité laser de 3.3e14 W/cm2 en 3 ns.

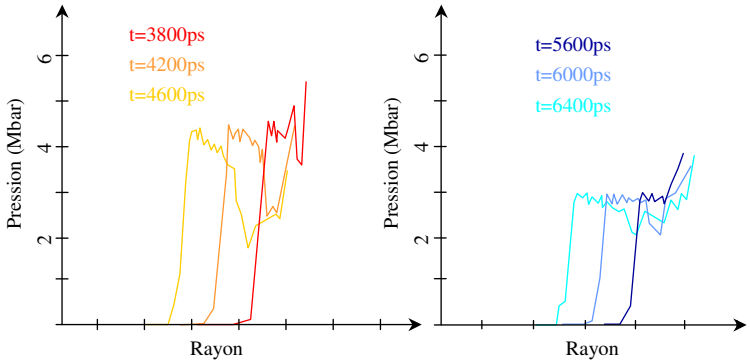


FIG. 6.3 – Evolution du choc en fonction du temps : la figure de gauche correspond à un choc de 1ns pour une puissance de 1.10^{15} W/cm^2. La figure de droite correspond à un choc de 3ns pour une puissance de $3{,}3.10^{14}$ W/cm^2. L'énergie déposée est la même dans les deux cas. Le choc avance de l'extérieur (grand rayon) vers l'intérieur (petit rayon). Il va donc de la droite vers la gauche.

Cela revient à deposer la même quantité d'énergie pendant 1 ou 3 ns. L'évolution de la pression du choc est présentée à différents instants en fonction de la position. Pour 1 ns, le choc arrive plus tôt et est plus intense. Cependant, la pression décroît légèrement au cours du temps. Pour 3 ns, le choc arrive plus tard, et il est moins intense, mais son intensité est constante. Il apparaît plus stable. Il faut donc selon le choc recherché trouvé un compromis entre un choc plus faible, mais plus soutenu et un choc plus fort, mais décroissant.

Utiliser une impulsion plus grande apparaît intéressant pour avoir un choc plus stable. Cependant un autre phénomène qu'on ne peut pas voir dans un code 1D est à prendre en compte. Pour éviter l'interaction directe entre le laser et le support de la cible en CW qui pourraient générer des rayons X parasites, une couche de plastique est déposée à l'intérieur du support. Lorsque le laser touche le plastique un plasma est formé et expulsé vers l'arrière. La forme conique du support entraîne une accumulation du plasma de plastique sur son axe, passage direct du laser. Il apparaît donc que, au bout d'un certain temps, le laser n'est plus absorbé par la cible, mais par cet amas de plastique. Des simulations 2D ont été faites par le groupe de Livermore et il est apparu que des impulsions supérieures à 2ns ne sont pas intéressantes car l'énergie après 2ns est perdue dans le plastique.

6.2.4 Analyse des résultats post-expérience

6.2.4.1 Transmission du choc

Une donnée utile que nous avons pu obtenir des simulations numériques est le rapport entre la vitesse de choc dans le matériau de référence (le quartz) et dans le matériau à étudier comme l'hélium ou l'hydrogène. Étudier la correspondance entre les deux vitesses de choc (figure 6.4) plutôt que en fonction de l'intensité laser permet de s'affranchir du couplage entre le laser et le matériau car comme nous l'avons vu, ce couplage est souvent surestimé dans les simulations. La vitesse de choc que ce soit dans l'hélium ou dans l'hydrogène est toujours légèrement supérieure à celle dans le quartz. Cela donne un ordre de grandeur de la gamme de vitesse que l'on recherche.

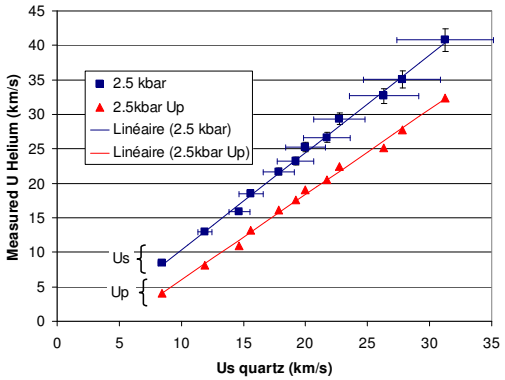


FIG. 6.4 – Relation entre la vitesse de choc dans le quartz et dans l'hélium. Les droites sont des fits linéaires des points obtenus. Les courbes roses et bleues représentent la vitesse de choc et la vitesse particule. Toutes les barres d'erreur n'ont pas été représentées pour ne pas surcharger la figure. Celles présentes donnent une idée de leur ordre de grandeur.

6.2.4.2 Evolution de la vitesse du choc

La méthode de désadaptation d'impédance est basée sur l'égalité des pressions et des vitesses au niveau de l'interface matériau de référence/matériau étudié. Toutes les données doivent donc être considérées à ce niveau. Cependant lorsque l'échantillon n'est pas réfléchissant, on ne peut pas mesurer directement la vitesse de choc. Seule une vitesse moyenne, calculée à partir du temps de transit, peut être mesurée. Ainsi pour être rigoureux, il faut relier cette vitesse moyenne à la vitesse au niveau de l'interface. Cela est possible si l'on connaît l'atténuation de la vitesse en fonction du temps ou de la distance parcourue. La figure 6.5 présente le déplacement du choc en fonction du temps pour de l'hélium à 1.1 GPa obtenu par les simulations. La différence entre la vitesse moyenne (distance parcourue de 68

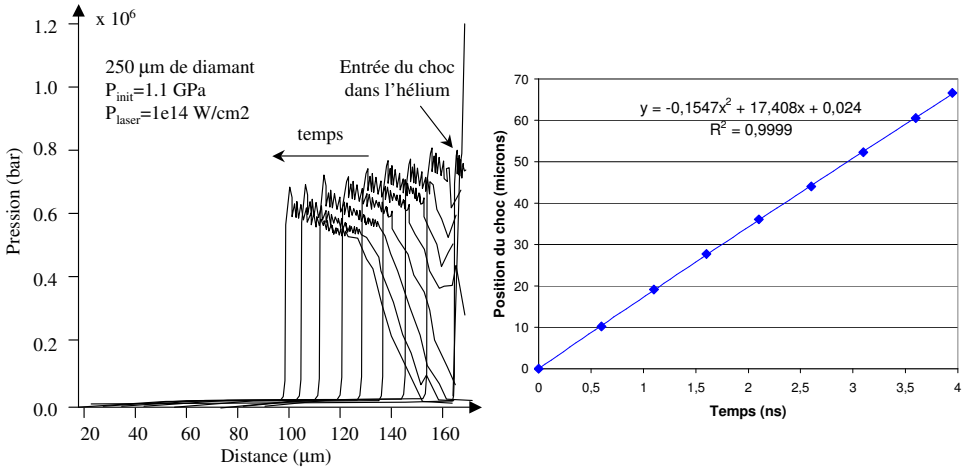


FIG. 6.5 – Déplacement du choc en fonction du temps. La figure de gauche présente l'évolution de la pression au niveau du front de choc. Chaque courbe correspond à des instants différents, le temps s'écoulant de la droite vers la gauche. On voit ainsi le choc qui pénètre dans l'hélium. La figure de droite présente la position du choc en fonction du temps. Chaque point bleu correspond à une courbe sur la figure de gauche. Le choc rentre dans l'hélium à d=0 et sort à d=68 μm. La courbe bleu solide est le fit des différents points.

μm) et la vitesse à l'interface est de 3%. Cette simulation a été réalisée pour un choc de 1e14 W/cm^2 avec une fenêtre de 250 μm. Plusieurs autres simulations ont été réalisées. En moyenne, l'atténuation est de l'ordre de 3 à 4% ce qui correspond aux observations expérimentales. On peut donc estimer de manière simple la vitesse de choc au niveau de l'interface à partir de la vitesse moyenne.

$$v_{interface} = 1.03 < v > \tag{6.23}$$

6.2.4.3 Estimation du préchauffage

Le préchauffage de la cible provient du rayonnement X produit lors de l'interaction laser-matière au niveau de l'ablateur. Ce rayonnement est ensuite absorbé par les différents matériaux. Cette énergie chauffe alors le matériau changeant son état initial. Les relations d'Hugoniot étant entièrement déterminées par les pression et densité initiales de l'échantillon, estimer le préchauffage est crucial pour le calcul de l'état final.

Préchauffage dans les cibles diamant Les cibles pour l'étude du diamant étaient constituées de plastique, d'Al, de quartz et de diamant. L'ensemble étant constamment à pression ambiante, une augmentation de la température entraîne une détente du matériau, diminuant ainsi sa densité initiale. C'est un préchauffage isobare. En dehors de l'influence sur la densité initiale pour les relations d'Hugoniot, l'estimation du préchauffage du diamant était particulièrement importante pour estimer un point de fusion.

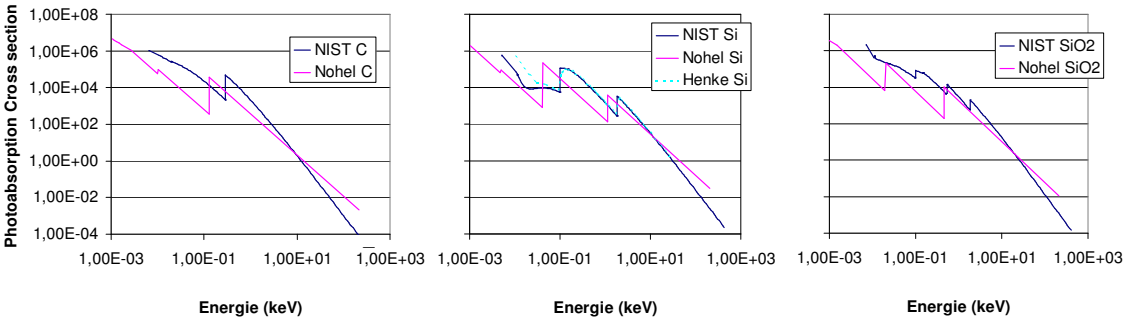


FIG. 6.6 – Opacités du diamant, de la silice et du quartz. La courbe bleue provient de NIST et la courbe rose correspond aux données NOHEL.

Le préchauffage est essentiellement un préchauffage radiatif. Le flux spectral très large sortant du plastique (courbe bleu clair figure 6.7) provient de l'interaction du laser avec le plastique. Il est directement lié au traitement de l'interaction laser-matière dans le code et c'est ce flux qui va préchauffer la matière. Les photons sont alors absorbés progressivement dans les couches suivantes. Les tables d'opacité utilisées jouent alors un rôle important car selon la table utilisée l'énergie absorbée ne sera pas la même. CHIVAS n'utilise pas directement de table, mais calcule l'opacité à chaque pas de temps. La figure 6.6 présente les opacités (représentées ici par la section efficace d'absorption des photons) pour le diamant, la silice et le quartz. Une première simulation a été réalisée avec des données uniquement Nohel (équations d'état et opacités). Nohel n'étant pas adapté pour les mélanges ou composés, le quartz est remplacé par de la silice. Les spectres d'absorption Nohel pour Si et pour le diamant sont très proches des données et modèles déjà existants (courbe NIST). On observe juste un léger décalage dans la position des maxima. Le quartz silice préchauffe de manière quasi uniforme et atteint ainsi une température de 0.14 à 0.1 eV pour une intensité laser de 3.5e14W/cm2. Le diamant préchauffe de 0.03 eV dans cette configuration (figure 6.8). Pour se rapprocher de la réalité, la silice est alors remplacée par un mélange Nohel pour le quartz. Le spectre d'opacité Nohel est légèrement différent des courbes NIST en particulier dans la zone <0.5keV (figure 6.6). L'absorption est donc légèrement sous estimée dans cette zone. Cependant la majeure partie des photons de cette gamme d'énergie est arrêtée dans l'aluminium comme le montre la figure 6.7. La courbe bleue claire représente l'ensemble du rayonnement produit lors de l'interaction laser-matière et sortant ainsi du plastique. L'essentiel de ce rayonnement est arrêté dans l'aluminium. Une fraction de ce flux sortant est alors absorbé par le quartz (pic autour de 0.1 et 1 keV) entraînant son préchauffage avant l'arrivée du choc. Le flux qui entre dans le diamant est essentielle-

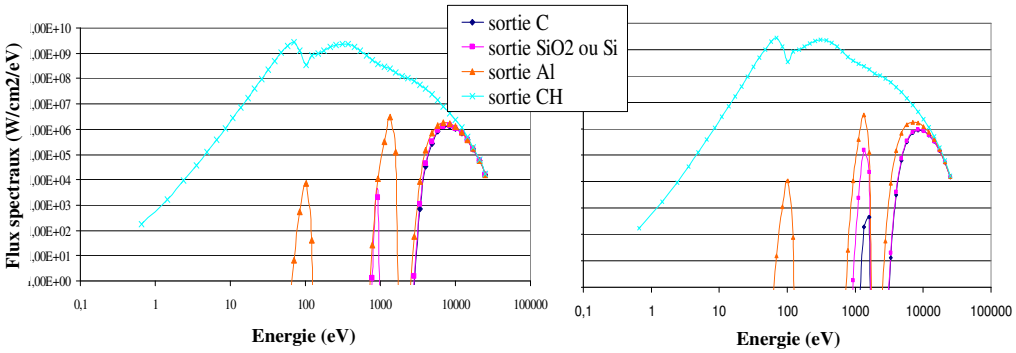


FIG. 6.7 – Flux spectraux à chaque interface lorsque le choc arrive dans le quartz. Les courbes bleue claire, rose, oranges et bleu foncé sont les flux spectraux à la sortie du plastique, de l'aluminium, du quartz et du diamant respectivement. Les figures de droite et de gauche représentent respectivement les simulations faites avec d'abord la silice puis le quartz. Les flux spectraux sortant du quartz ou de la silice sont légèrement différents dû à la position légèrement différente de leurs pics d'absorption.

ment constitué de photons de fortes énergies < 4 keV et le traversent sans déposer d'énergie. La seule énergie absorbée dans le diamant est dûe à des photons de 1 keV environ et cela entraîne un très faible préchauffage du diamant < 0.03 eV, comme illustré sur la figure 6.8. Le préchauffage est identique dans le quartz quel que soit l'équation d'état utilisé (SESAME ou Nohel). Par contre, pour le diamant, le préchauffage est nul avec une EOS SESAME alors qu'il est de 0.03 eV avec une EOS Nohel.

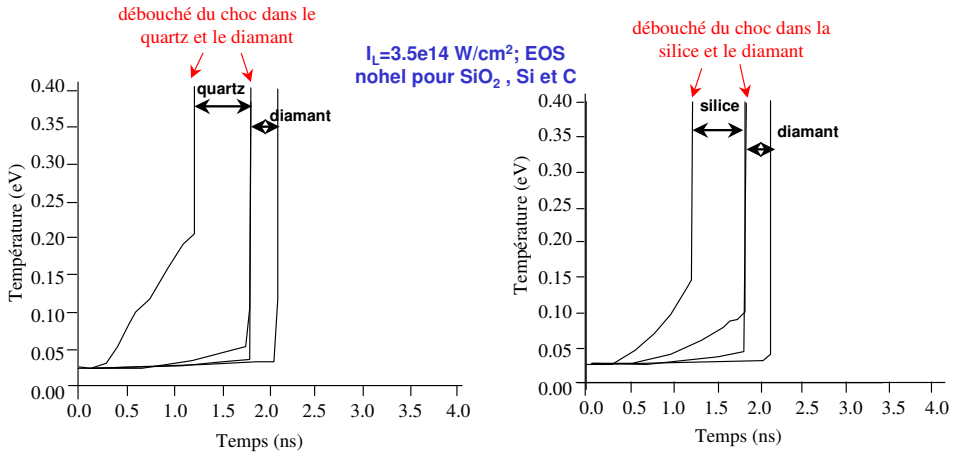


FIG. 6.8 – Préchauffage du diamant pour une intensité laser de 3.5e14 W/cm2. Le préchauffage dans le diamant est inférieur à 0.03 eV que ce soit dans une configuration avec de la silice ou avec du quartz.

Toutes ces simulations ont été réalisées pour une intensité laser maximale (3.5e14 W/cm2) sans facteur d'abattement. Toutes les données obtenues sont ainsi des limites hautes. Le quartz préchauffe ainsi au maximum de 0.2 eV et le diamant de 0.03 eV.

Préchauffage dans les cibles précomprimées Le préchauffage pour les cibles précomprimées a été étudié aussi. La figure 6.9 présente le préchauffage dans le quartz et dans l'hélium (P=0.12 GPa, fenêtre en diamant de 150 μm) pour différentes configurations de cibles. La cible la plus utilisée est la cible constituée de plastique et d'une couche d'or. Le préchauffage dans le quartz est de 0.06 eV et il est inférieur à 0.03 eV dans l'hélium (courbe bleue). Pour améliorer le couplage entre le laser et la cible, des cibles sans plastique ont été testées. Un flash d'aluminium est directement déposé sur la fenêtre en

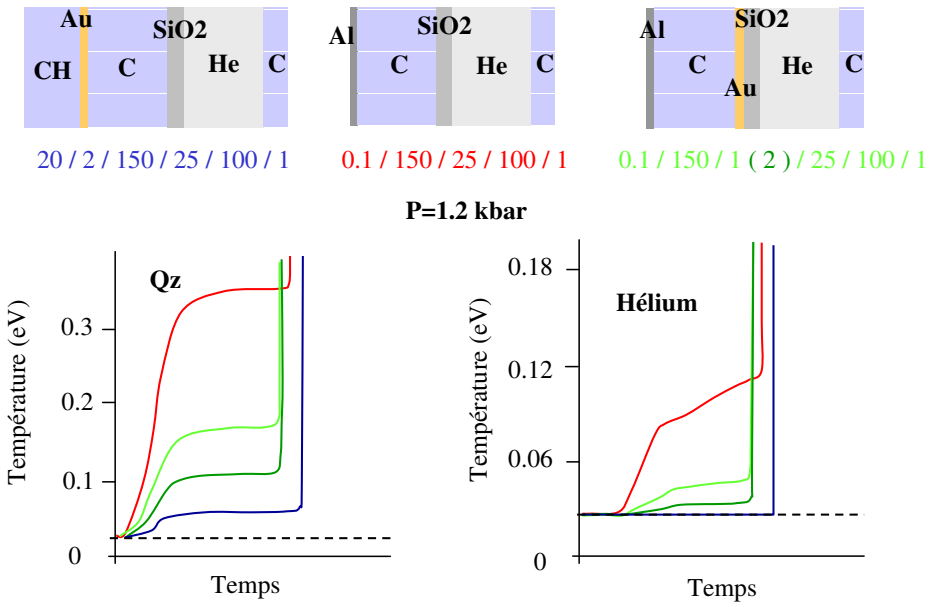


FIG. 6.9 – Estimation du préchauffage pour plusieurs configurations de cibles : la figure de gauche correspond au quartz et celle de droite à l'hélium. Les températures sont toujours au niveau de l'interface. La courbe bleue correspond à la configuration classique avec une couche de plastique et de l'or. La courbe rouge correspond à la situation ou un flash d'aluminium est déposée sur la fenêtre en diamant. Il n'y a pas de plastique, ni d'or. Les deux courbes vertes représentent des variations des la cible avec flash d'aluminium. Une couche d'or (1 μm et 2 μm, courbe vert foncée et vert claire respectivement) a été rajoutée du côté du quartz. Les chiffres indiqués en dessous de chaque cible correspondent aux épaisseurs en microns de chaque matériau.

diamant. Le préchauffage est alors très supérieur (courbe rouge). Enlever le flash d'aluminium permet de diminuer légèrement le préchauffage (différence de l'ordre de 0.02 eV), mais le couplage avec le laser est moins bon. La pression finale obtenue est plus faible. Pour diminuer le préchauffage, une couche d'or est alors ajoutée juste avant le quartz (1 μm et 2 μm, courbe vert foncé et vert clair respectivement). Le préchauffage est alors divisé par 2 et 3 selon l'épaisseur de la couche d'or. Le préchauffage dans l'hélium est ainsi inférieur à 0.035 eV. Cette configuration de cible n'a pas encore été testée expérimentalement, mais elle paraît très prometteuse : cible simple, meilleur couplage et préchauffage faible.

CQFR : Les simulations numériques sont indispensables car elles permettent de dimensionner l'expérience et sont une aide dans l'interprétation des résultats obtenus.

6.3 Lasers utilisés

6.3.1 OMEGA

Toutes les expériences sur H_2, He et leurs mélanges ont été réalisées avec le laser OMEGA du LLE (Laboratory for Laser Energetics) à Rochester. OMEGA est constitué de 60 faisceaux répartis sur une sphère qui peuvent délivrer jusqu'à 30 kJ sur cible à 351 nm.

La chambre d'interaction a un diamètre de 3.3 m (figure 6.10 et 6.11). En plus des 60 trous destinés aux faisceaux, 32 trous supplémentaires sont destinés aux diagnostics et systèmes de positionnement de la cible.

La taille du faisceau et l'uniformité de la tâche focale est contrôlée grâce à l'utilisation de lame de phase SSD (Smoothing by Spectral Dispersion). Il existe 2 tailles 300 μm et 800 μm. Pour avoir une

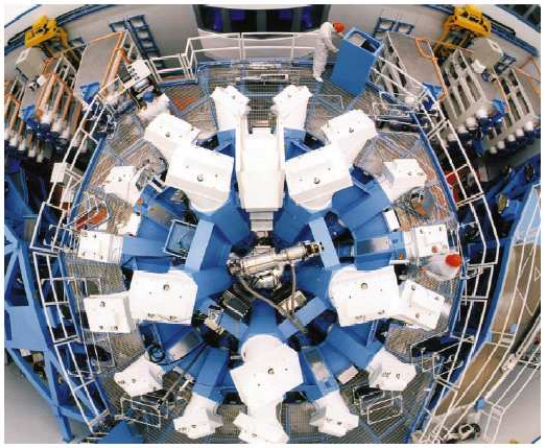


FIG. 6.10 – Vue extérieure de la chambre d'interaction

FIG. 6.11 – Schéma du laser Omega

zone plane plus grande au centre de la cible, nous avons surtout utilisé celles de 800 μm, même si cela réduisait ainsi l'intensité sur cible.

Remarque sur les lames de phase Le rôle d'une lame de phase est d'uniformiser la tâche focale du faisceau. En effet, on observe lors de la focalisation du faisceau des points du surintensité dû à l'interférence du faisceau avec lui même. Ces pics d'intensité peuvent entraîner des effets non linéaires indésirables et des instabilités hydrodynamiques dues à un éclairement non uniforme de la cible. Pour éviter ce problème, Kato [68] développa les RPP (Random Phase Plate). Ces lames de phase aléatoire sont constituées de petits carrés qui déphasent le faisceau de 0 ou π de manière aléatoire. Chaque petit carré agit comme une ouverture de diffraction et divise le faisceau en plein de petits faisceaux. Ces petits faisceaux sont ensuite superposés grâce à une lentille. Le profil d'intensité a alors une enveloppe en sinus cardinal. On peut, pour obtenir un profil plus plan, utiliser à la place des RPP des PZP (Phase Zone Plate) [69]. Les carrés sont remplacés par des lentilles de Fresnel. On obtient alors un profil supergaussien avec des pics de surintensités qui sont lissés ensuite par conduction thermique. Les lames de phase SSD [70]utilisées à OMEGA sont un peu différentes. L'idée est de faire varier le motif d'interference sur une échelle de temps rapide comparé au temps de réponse de la cible. Ainsi à un instant donné, les pics sont présents, mais moyenné sur le temps, l'intensité est lissée. La figure 6.12 présente différentes tâches focales avec ou sans lame de phase.

Pour nos expériences, nous avons utilisé au maximum 6 faisceaux. Cette limitation est due à la configuration de la cible. A cause de l'ouverture angulaire réduite de la cellule, tout faisceau supplémentaire viendrait toucher les bords de la cellule contribuant très faiblement à l'ablation du pousseur et produisant beaucoup de rayonnement parasite.

3 diagnostics ont été utilisés : le diagnostic VISAR constitués de 2 interféromètres (ASBO 1 et ASBO 2) avec des étalons différents pour la mesure de la vitesse de choc, le diagnostic SOP (Self Optical Pyrometer) pour la mesure de l'émission propre et enfin un diagnostic X pour vérifier l'apparition éventuel de rayons X parasites. Le diagnostic X n'a qu'un rôle qualitatif pour nos expériences. La figure 6.13 représente l'intérieur de la chambre d'interaction lors d'un tir laser sur une cible pré-comprimée.

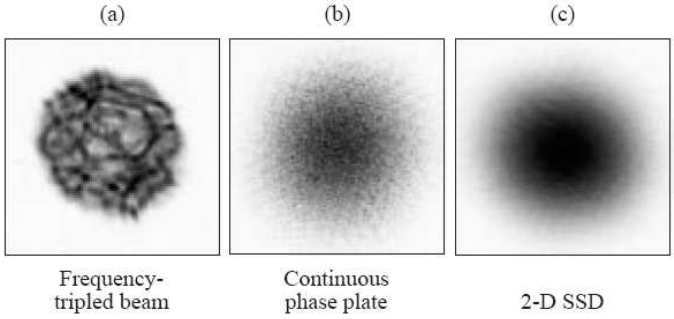


FIG. 6.12 – Lissage de la tâche focale du laser : a) tâche focale à 3ω sans phase plate ; b) avec une phase plate continue ; c) avec 2D SSD phase plate

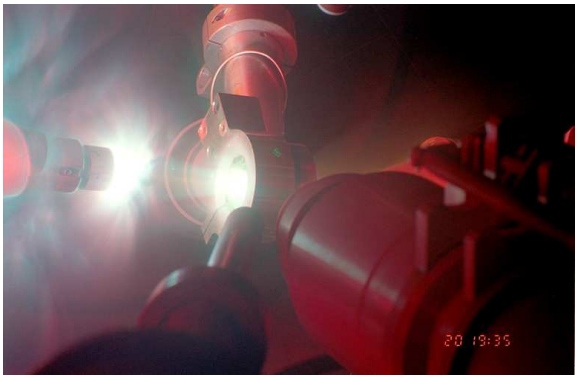


FIG. 6.13 – Intérieur de la chambre d'interaction lors d'un tir laser sur une cible pré-comprimée à Omega

6.3.2 LULI 2000

Les expériences sur le diamant ont été réalisées avec le LULI 2000 à Palaiseau. Le LULI 2000 est constitué de deux faisceaux pouvant délivrer 1kJ chacun à ω soit environ 800 J au total à 2ω en 1.5ns. Le schéma du montage est présenté sur la figure 6.14.

Le tableau 6.2 présente une comparaison des principales caractéristiques de OMEGA et du LULI 2000.

	nb f. total/utilisés	PZP	Énergie sur cible	Impulsion	P_{max}	Diagnostics
OMEGA	60 / 6	800 μm	3 kJ à 3ω	1 ns	5.6e14 w/cm^2	VISAR 1 à 2ω 16.89 km/s VISAR 2 à 2ω 6.9 km/s SOP
LULI 2000	2 / 2	400 μm	800 J à 2ω	1.5 ns	3.5e14 w/cm^2	VISAR 1 à ω 12.7 km/s VISAR 2 à ω 6.8 km/s SOP

TAB. 6.2 – Comparaison entre Oméga et LULI 2000

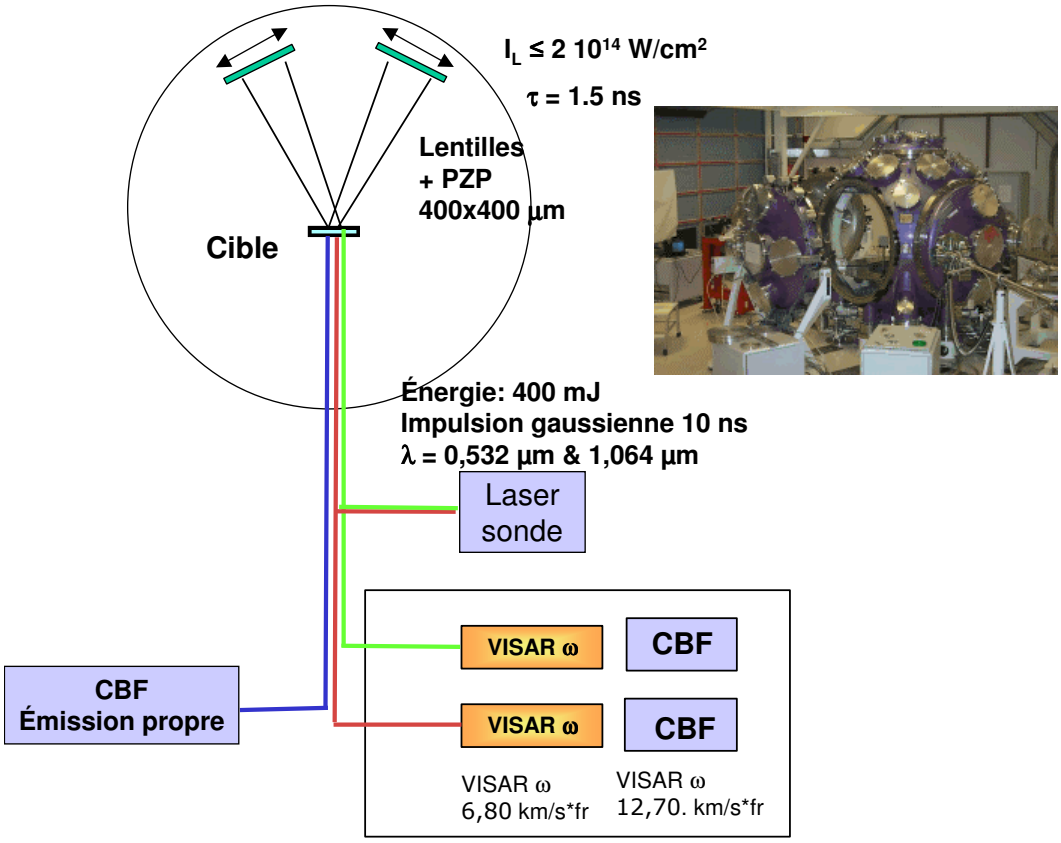


FIG. 6.14 – Schéma du montage de l'expérience au LULI2000

Quatrième partie

Résultats

Chapitre 7

Diamant

Sommaire

7.1 Motivations **125**
7.2 Connaissances actuelles sur le diagramme de phase **126**
7.2.1 Mesures sur l'Hugoniot 126
7.2.2 Evolution de la réflectivité 126
7.2.3 Modèles théoriques 127
7.3 Résultats **128**
7.3.1 Configuration expérimentale 128
7.3.2 Mesures réalisées 130
7.3.3 Evolution de P, ρ, T le long de l'Hugoniot 132
7.3.4 Evolution de la réflectivité 135
7.4 Conséquences astrophysiques **135**
7.5 Conclusion **136**

7.1 Motivations

Le carbone est l'un des éléments les plus abondants de l'univers. C'est un système modèle pour comprendre l'effet de la pression sur les liaisons covalentes et il joue également un rôle essentiel en géologie et astrophysique. Connaître ses propriétés dans des conditions extrêmes de température et de pression est essentiel pour modéliser l'intérieur des planètes comme Neptune ou Uranus [4, 5] ou d'autres objects astrophysiques comme les naines blanches. Pour l'ensemble de ces raisons, c'est un matériau très étudié depuis de nombreuses années. Ces deux formes les plus connues sont le carbone graphite et le diamant, seule structure connue à hautes pressions. La synthèse du diamant a lieu sous hautes pressions et températures dans l'intérieur de la terre. Il est le matériau le plus dur connu à ce jour et a ainsi suscité beaucoup de recherches pour développer des applications pratiques et technologiques.

Cependant malgré son importance fondamentale et astrophysique, le domaine de stabilité de ce matériau covalent est peu connu. Après plusieurs années d'efforts expérimentaux, il a été montré que la courbe de fusion du diamant avait une pente positive au dessus du point triple carbone/diamant/liquide [71]. Il n'existe aucune donnée expérimentale concernant la courbe de fusion du diamant et les théories sont nombreuses et contradictoires en particulier sur l'existence ou non d'un maximum sur cette courbe. Chaque théorie est basée sur des niveaux d'approximation différents. Les méthodes ab-initio se basent

principalement sur le numéro atomique en considérant les intéractions entre particules élémentaires (électrons et protons) [72, 73, 74]. Les modèles chimiques sont basés sur une description des interactions entre les atomes de carbone [75, 76]. Et enfin les modèles thermodynamiques [77] fittent des modèles d'énergie de Gibbs basés sur les données expérimentales disponibles. Les calculs ab-initio ont mis en avant un diagramme de phase intéressant avec la transformation du diamant en une structure BC8 avec un maximum sur la courbe de fusion entre 450 GPa [74] et 630 GPa [73]. L'approche thermodynamique prévoit un maximum à 300 GPa [77]. Les calculs chimiques, eux, ne trouvent aucun maximum. Ce maximum serait dû à une perte de stabilité de l'hybridation sp^3 dans la phase fluide. La détermination de points de fusion à haute pression apparaît ainsi comme un bon test pour ces différents modèles.

7.2 Connaissances actuelles sur le diagramme de phase

7.2.1 Mesures sur l'Hugoniot

Les premières mesures réalisées sur l'Hugoniot du diamant ont été réalisées par Pavlovskii en 1971 [78]. Aucune nouvelle donnée ne fût mesurée jusqu'à récemment où Nagao et al. [79] ont mesuré l'équation d'état du diamant jusqu'à 2 TPa. La figure 7.1 présente dans le plan U_S-U_p les deux séries de résultats.

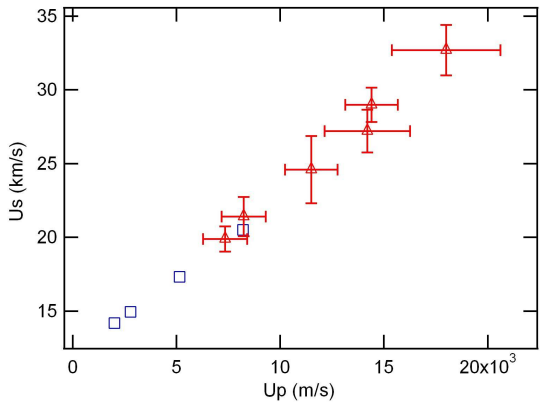


FIG. 7.1 – Hugoniot du diamant : Us vs Up. Les carrés bleus sont les points de Pavlovskii [78]. Les triangles rouges sont les points de Nagao et al [79].

Les mesures de Nagao et al. ont été réalisées avec l'aluminium comme matériau de référence. Ces mesures ont été obtenues par estimation du temps de transit ce qui donne des erreurs sur les vitesses de choc allant de 3.8% à 9.3%. Un modèle de Grüneisen avec l'hypothèse $\frac{g}{V} = cst$ a été utilisé pour estimer l'Hugoniot secondaire.

7.2.2 Evolution de la réflectivité

Bradley et al. ont réalisé des expériences de chocs lasers pour étudier les propriétés du diamant le long de l'Hugoniot entre 600 et 3000 GPa. Leurs mesures de réflectivité montrent que le diamant est opaque en dessous de 600 GPa et a une réflectivité qui augmente progressivement entre 600 et 1000 GPa pour atteindre un maximum de 30% après 100 GPa comme illustré sur la figure 7.2. Cette augmentation de réflectivité est induite par la fermeture du gap et le passage entre un état solide et un état liquide. Comme nous le verrons, le passage solide-liquide a lieu sur un domaine de 300 GPa le long de l'hugoniot.

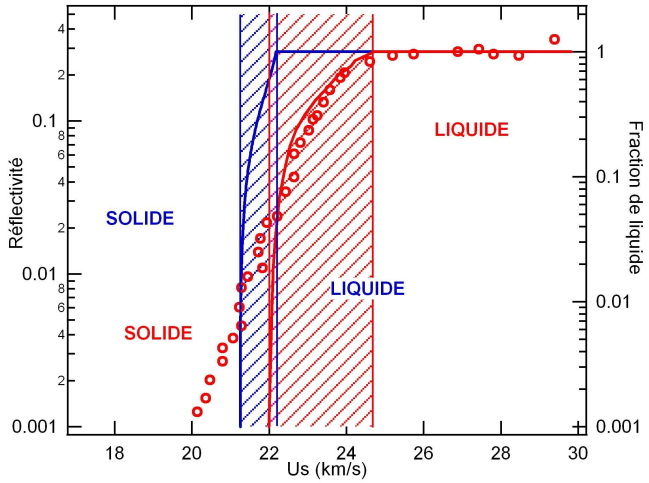


FIG. 7.2 – Réflectivité en fonction de U_S [80]. L'ensemble des points représente l'évolution de la réflectivité en fonction de la vitesse de choc. Les courbes solides rouges et bleues indiquent la fraction de liquide donnée par le modèle de Van Thiel Ree et de Fried et Howard en fonction de la vitesse de choc. Les zones hachurées représentent les zones mixtes solide/liquide.

7.2.3 Modèles théoriques

7.2.3.1 Modèle de Fried et Howard

Le modèle de Fried et Howard est un modèle thermodynamique simple basé sur la recherche d'une forme explicite de l'énergie de Gibbs G(P,T) ajustée sur les données expérimentales.

$$G(P,T) = G_0(T) + \Delta G(P,T) \tag{7.1}$$

Le premier terme représente les propriétés de G pour une pression égale à 1 atm tandis que le deuxième terme décrit les effets de la pression. G_0(T) est lui même déterminé en fonction de H_0 et S_0 : $G = H - TS$.

$$H_0(T) = \Delta H_0 + \int_{T_0}^{T} C_{p,0}(T)dT \tag{7.2}$$

$$S_0(T) = \Delta S_0 + \int_{T_0}^{T} \frac{C_{p,0}}{T}(T)dT \tag{7.3}$$

Les données expérimentales des chaleurs spécifiques pour le diamant et le graphite sont approximées par une somme d'oscillateurs de Einstein : $E(x) \equiv \frac{x^2 e^x}{(e^x-1)^2}$.

$$C_{p,0} = \sum_{i=1}^{2} a_i E(\Theta_i/T) + a_3 T \tag{7.4}$$

Comme $dG = VdP - SdT$, on peut définir ΔG(P,T) à partir de V(P,T) :

$$\Delta G(P,T) = \int_{P_0}^{P} V(P,T)dP \tag{7.5}$$

Fried et Howard ont utilisé pour V(P,T) une équation d'état de type Murnaghan généralisée :

$$V(P,T) = V_0[nP/B_0 + f(T)]^{-1/n} \tag{7.6}$$

où B_0 est le bulk modulus et f(T), une fonction ne dépendant que de la température et dont la forme a été ajustée sur les données physiques. L'expression exacte est donnée dans [77]. Chaque paramètre est alors ajusté pour retrouver les données expérimentales du carbone, du diamant et de deux formes de liquides. Le diagramme de phase est alors déterminé en calculant à chaque point P,T les énergies de Gibbs pour chaque système, l'énergie minimum déterminant alors la phase stable du domaine.

Propriétés générales d'une courbe de fusion : formule de Clausius-Clapeyron La courbe de fusion représente un état d'équilibre entre un solide et un liquide. On peut donc écrire que le long de cette courbe la variation d'énergie libre de Gibbs pour le solide est égale à la variation du liquide, soit :

$$dG_l = V_l dP - S_l dT = V_s dP - S_s dT = dG_s \tag{7.7}$$

On a alors :

$$(V_l - V_s)dP = (S_l - S_s)dT \tag{7.8}$$

soit :

$$\frac{\Delta S}{\Delta V} = \left(\frac{dP}{dT}\right)_{fusion} \tag{7.9}$$

Cette équation est connue sous le nom de formule de Clausius-Clapeyron. Elle est valable pour toute transition de phase. Le passage d'un milieu solide à un milieu liquide est donc accompagné d'une variation de volume et d'une variation d'entropie. La variation d'entropie est toujours positive et la variation de volume l'est aussi dans la plupart des cas. Cependant, il arrive que dans certains cas, on observe une variation de volume négative et ainsi l'apparition d'un maximum sur la courbe de fusion.

7.2.3.2 Autres modèles

Les deux autres grandes catégories de modèles sont les modèles ab-initio [72, 73, 74] basés sur les interactions entre électrons et noyaux et les modèles chimiques [75, 76] basés sur une minimisation de l'énergie libre déterminée par des interactions entre atomes et particules chargées.

Les modèles ab-initio prévoient un maximum sur la courbe de fusion du diamant dû à une déstabilisation de l'hybridation sp^3. Dans le modèle de Fried et Howard, l'apparition du maximum provient des variations du bulk modulus dont la dérivée par rapport à la pression est plus petite pour le liquide que pour le solide. Dans les modèles chimiques aucun maximum n'est observé. L'ensemble des modèles sont présentés figure 7.3.

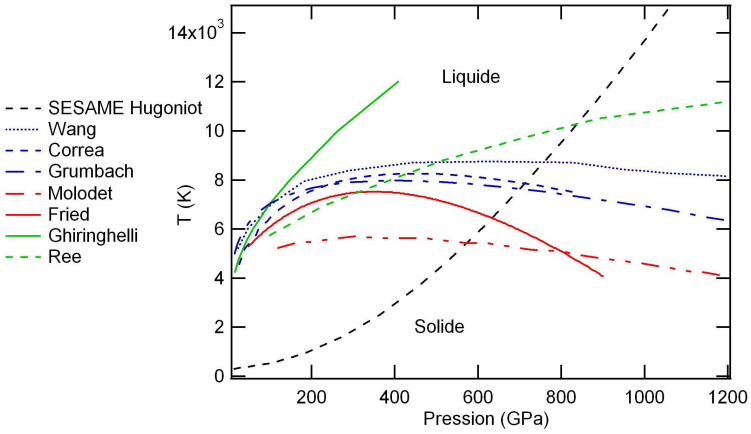
Les mesures réalisées au LULI ont pour but de réaliser une détermination plus précise de l'Hugoniot autour du point de fusion et donc de clarifier la question de l'existence d'un maximum ou non.

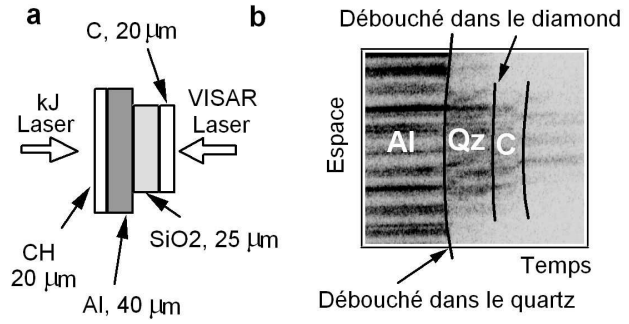
7.3 Résultats

7.3.1 Configuration expérimentale

Les expériences ont été réalisées au LULI 2000. 2 faisceaux lasers à 527 nm ont été utilisés avec un pulse de 1.5 ns et une énergie inférieure à 1 kJ. La tâche focale avait un diamètre de 400 μm. L'intensité maximale sur cibles était ainsi de 5.10^{14}W.cm^{-2}. Les cibles sont présentées sur la figure 7.4a.

Elles sont constituées d'une couche de plastique qui sert d'ablateur et une couche d'aluminium destinée à réduire la quantité de rayons x produite lors de l'interaction du laser avec le plastique. Le quartz





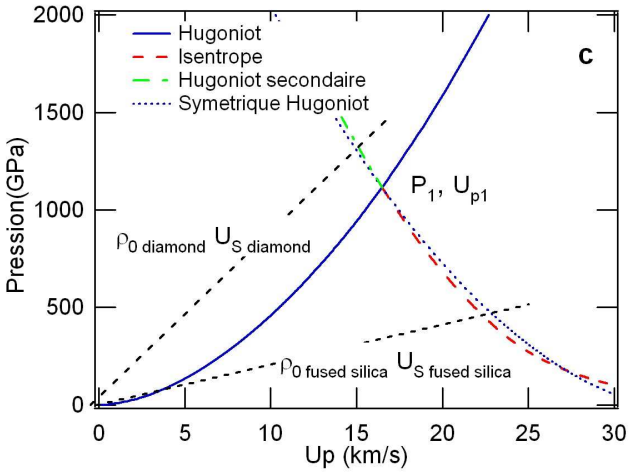


FIG. 7.4 – Configuration expérimentale. La figure a présente un schéma de la cible. La figure b présente une image VISAR d'un choc. Avant le débouché dans le quartz, le laser se réfléchit sur l'aluminium donnant des interférences immobiles. Lorsque le choc débouche dans le quartz, puis dans le diamant, il se réfléchit alors sur le front de choc. Le saut de franges est proportionnel à la vitesse de choc. La figure c présente la méthode de désadaptation d'impédance.

est utilisé comme pousseur et matériau de référence. Une plaque de diamant de type IIA est ensuite posée sur celui-ci et est maintenue en place grâce aux forces d'adhésion uniquement. Dans certaines cibles tests, le diamant a été remplacé par des plaques de quartz amorphe. Une image VISAR est présentée figure 7.4b. Les VISARS utilisés fonctionnaient à une longueur d'onde de 1064 nm. L'indice du diamant et du quartz sont parfaitement connus [82]. Ils sont nécessaires pour extraire la vitesse du choc à partir du saut de franges observé sur l'image VISAR. La figure 7.4c présente la méthode de désadaptation d'impédance pour la silice amorphe et pour le diamant. L'état atteint pour la silice amorphe se situe sur l'isentrope de détente, alors que pour le diamant, il se situe sur l'Hugoniot secondaire. L'isentrope de détente et l'Hugoniot secondaire ont été estimées avec le modèle du quartz développé au chapitre 5.

Des simulations hydrodynamiques ont été réalisées pour estimer le préchauffage (voir chapitre 6). Il est de 0.2 eV dans le quartz et de 0.03 eV dans le diamant. On a donc considéré qu'il pouvait être négligeable.

7.3.2 Mesures réalisées

En décembre 2005, deux séries de mesures on été réalisées : une série sur la silice amorphe et une série sur le diamant. Les mesures sur le quartz amorphe ont été utilisées comme test pour déterminer les erreurs systématiques. La configuration de cibles étant exactement la même, chaque problème lié à la cible apparaissant sur un système devait apparaître sur le second système. De plus de nombreuses Hugoniots du quartz à des densités initiales différentes ont été déterminées auparavant [14]. Ces différentes Hugoniots forment une série de droites parallèles déterminées uniquement par la densité initiale. On s'attend donc à retrouver ce phénomène.

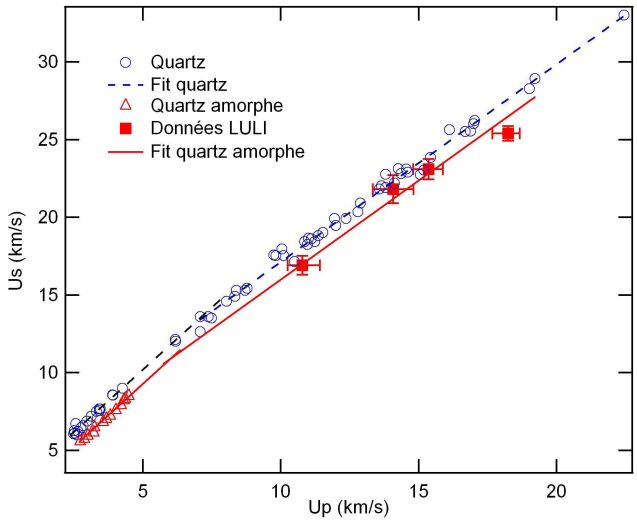


FIG. 7.5 – Us vs Up pour le quartz amorphe.

Les résultats obtenus sont présentés figure 7.5. Même s'il n'existe aucune donnée dans la littérature pour le domaine étudié, les données se situent, comme attendu, sur une droite parallèle aux données du quartz avec un décalage compatible avec un coefficient de Grüneisen de 0.6 et dans le prolongement des données précédentes [83]. Ces premiers résultats nous ont ainsi permis de valider la géométrie des cibles ainsi que l'utilisation du quartz comme matériau de référence.

4 tirs ont été réalisés sur le diamant. Les résultats sont présentés dans le tableau 7.1. Toutes les vitesses ont été mesurées par VISAR.

$U_{S_{qz}}(km/s)$	$U_{S_C}(km/s)$	$U_{p_C}(km/s)$	P (GPa)	ρ/ρ_0	R
25.8(2)	26.3(1)	15.2(5/6)	1400(46/47)	2.4(1)	19(10)
17.4(1)	20.0(2)	8.8(4)	615(26)	1.8(1)	13(9)
22.7(1)	23.1(1)	13.0(5)	1051(34/33)	2.3(1)	19(9)
25.4(2)	26.1(1)	14.9(5/6)	1361(44)	2.3(1)	28(9)

TAB. 7.1 – Ensemble des points obtenus sur le diamant par VISAR. Les nombres indiqués entre parenthèses sont l'erreur sur le dernier chiffre du résultat. La pression initiale est de 1 bar et la densité du diamant est de 3.51 g/cm^3. Les erreurs pour les vitesses de choc sont des déviations standards.

En septembre 2006, une nouvelle série de 5 points sur le diamant a été réalisée avec la même configuration expérimentale. Cependant, à cause de franges parasites importantes, les sauts de franges sur les images VISAR n'ont pas pu être bien estimés et seuls des mesures de temps de transit ont été réalisées. Les barres d'erreur sont alors plus grandes et la réflectivité n'a pas pu être évaluée. Les résultats sont présentés dans le tableau 7.2. L'ensemble des deux séries de mesure est présenté la figure 7.6.

$U_{S_{qz}}(km/s)$	$U_{S_C}(km/s)$	$U_{p_C}(km/s)$	P (GPa)	ρ/ρ_0	R
18.2(9)	22.6(10)	9.0(8)	715(65)	1.7(1)	
23(14)	23.1(10)	13.2(13)	1073(112)	2.3(3)	
26.4(17)	26.6(13)	15.7(17)	1464(159)	2.4(4)	
21.1(12)	21.6(9)	11.8(11)	893(88/90)	2.2(3)	
17.9(9)	22.5(9)	8.8(8)	693(60)	1.6(1)	

TAB. 7.2 – Ensemble des points obtenus sur le diamant par mesure du temps de transit. Les nombres indiqués entre parenthèses sont l'erreur sur le dernier chiffre du résultat. La pression initiale est de 1 bar et la densité du diamant est de 3.51 g/cm^3

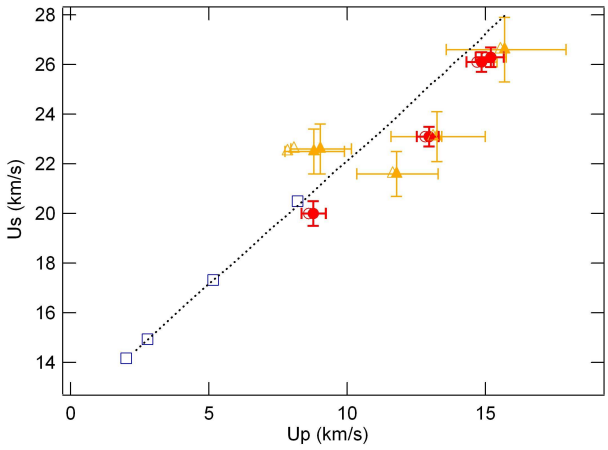


FIG. 7.6 – Us vs Up pour le diamant. Les ronds rouges ont été obtenus en décembre 2005 et les triangles oranges correspondent aux mesures de septembre 2006. Les symboles pleins et vides ont été obtenus respectivement avec le modèle de Gruneisen et l'Hugoniot symétrique pour le quartz. Les carrées bleus sont les points de Pavlovskii.

Deux méthodes ont été utilisées pour extraire la relation $U_s(U_p)$ du diamant à partir des mesures des vitesses de choc dans le quartz et dans le diamant : la méthode de l'Hugoniot symétrique et la méthode de l'Hugoniot secondaire calculée avec le modèle de Gruneisen. La différence entre ces deux

déterminations donnent la barre d'erreur pour l'isentrope calculée du modèle du quartz. On voit que celle-ci est plus petite que les barres d'erreur expérimentales.

On observe une discontinuité claire pour U_p > 11 km/s. Cette discontinuité est soit due à une erreur systématique, soit à une transition de phase. Cependant les tests sur le quartz amorphe ont permis de montrer que les erreurs systématiques sont inférieures au décalage observé. De plus, l'incertitude sur l'équation d'état du quartz pour la détente isentropique introduit des barres d'erreur faibles comme estimée par la différence entre l'Hugoniot symétrique et le modèle de Gruneisen.On peut donc penser que ce décalage serait du à une transition de phase solide/liquide. Une comparaison avec les modèles existants nous a alors permis d'avoir une meilleure compréhension du phénomène.

7.3.3 Evolution de P, ρ, T le long de l'Hugoniot

Les mesures U_S-U_P sont converties dans le plan P-ρ et présentées figure 7.7. On observe une augmentation claire de la densité à la fusion. En extrapolant les points de Pavlovskii dans la phase diamant et nos points, on obtient une discontinuité de volume de -9%. Cette discontinuité provient de deux contributions : la discontinuité intrinsèque due à la fusion et la réduction de volume provenant de l'abaissement de la température le long de l'Hugoniot du à l'enthalpie de fusion. En comparant, à pression égale, la température et le volume obtenu sur l'Hugoniot du diamant de SESAME (pas de discontinuité) et sur l'Hugoniot de Fried, on peut estimer que l'abaissement de température entraîne une variation de volume de -1% environ. La variation de volume du à la fusion à 700 GPa est donc de -8% environ.

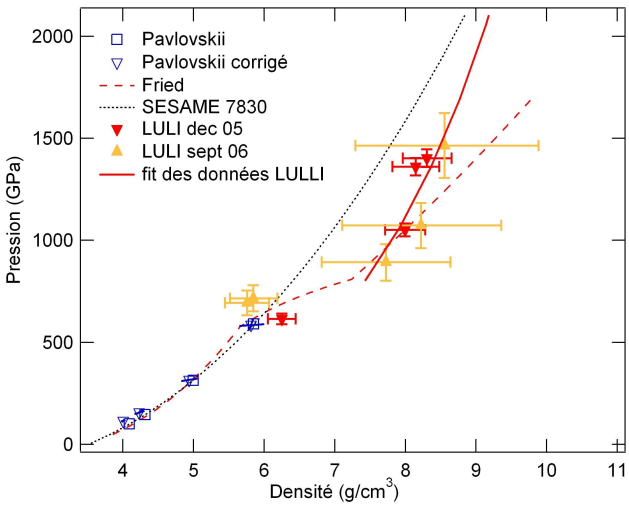


FIG. 7.7 – Hugoniot du diamant dans le plan P-ρ. Les carrés bleus sont les points de Pavlovskii et les triangles bleus sont ces mêmes points corrigés par la limite élastique. La courbe rouge solide correspond à un fit de nos données (Us=1.25Up+7.03)et la courbe bleu pointillé au modèle SESAME. Les triangles rouges et oranges correspondent respectivement aux mesures de décembre 2005 et septembre 2006. La courbe rouge pointillée correspond à l'Hugoniot du modèle de Fried.

Dans la plupart des systèmes, la discontinuité de volume à la fusion est généralement positive. Ici, cette variation est négative et la pente $\left(\frac{dT}{dP}\right)_{fusion}$ est donc négative à 700 GPa. Hors, au dessus de 20 GPa, cette pente est positive. On doit donc avoir un maximum sur la courbe de fusion entre 20 et 700 GPa. Ce maximum est d'après les modèles du à une augmentation progressive du nombre de coordination dans la phase fluide qui passe de 4 à 5, puis 6. La mesure d'une discontinuité de volume négative peut donc être une quantification de la perte des liaisons sp^3 entre les atomes de carbone. Les

modèles chimiques, basés sur des potentiels empiriques ne peuvent pas prédire ce changement dans la configuration électronique et ne montrent donc pas de maximum. Les calculs ab-initio prédisent une discontinuité, cependant cette discontinuité est trop petite (environ -1%). Le changement de configuration électronique pourrait être ainsi sous estimé. La figure 7.8 présente les discontinuités de volume calculées par différents modèles.

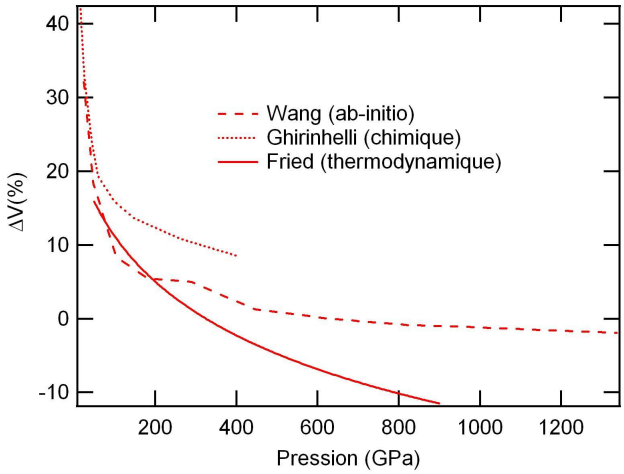


FIG. 7.8 – ΔV en fonction de la pression pour différents modèles le long de la courbe de fusion

La description thermodynamique de Fried et Howard [77] est en bon accord avec notre estimation de la discontinuité de volume. Dans ce modèle, l'apparition du maximum provient des variations du bulk modulus dont la dérivée par rapport à la pression est plus petite pour le liquide que pour le solide. Le changement de configuration n'est pas apparent dans ce modèle.

Sur la figure 7.7, les données sont comparées à l'Hugoniot calculé par le modèle de Fried. Le domaine équilibre solide/liquide s'étend sur 300 GPa. La discontinuité de volume est en bon accord avec nos points. Les points, obtenus dans la phase solide de Pavlovskii, doivent être corrigés pour prendre en compte la correction hydrostatique ce qui a été fait par Kondo et Ahrens [84]. Ces nouveaux points sont représentés par les triangles bleus renversés sur la figure 7.7. Le modèle de Fried prédit que le solide devient liquide vers 600 GPa. Hors, d'après nos points, la discontinuité apparaît entre 690 et 900 GPa. Le point de fusion se situerait donc au délà de 690 GPa et avant 900 GPa. On a ainsi une borne inférieure et supérieure. Cette valeur est en accord avec les calculs ab-initio qui estiment le point de fusion entre 710 et 760 GPa. Cependant comme nous l'avons dit précédemment, la discontinuité de volume à la fusion est sous-estimée par ces calculs.

Un dispositif pour collecter l'émission propre de l'échantillon a été utilisé pour mesurer la température du corps noir. La figure 7.9 présente une image obtenue lors d'un tir. Le signal du quartz est très clair, mais le signal du diamant est très faible. Il se situerait après 1ns. Ce type de signal fût également observé lors des mesures avec le quartz amorphe. Il n'apparaît donc pas évident que l'on puisse l'attribuer spécifiquement au diamant. Le diagnostic de température n'est pas assez sensible pour des températures inférieures à 1 eV. Même si aucune mesure directe n'a été possible, on peut dire que le signal est inférieur à 10000 K. La température peut cependant être estimée à partir du modèle de Fried ou des tables SESAME. A 700 GPa, la température est de 7500K d'après SESAME.

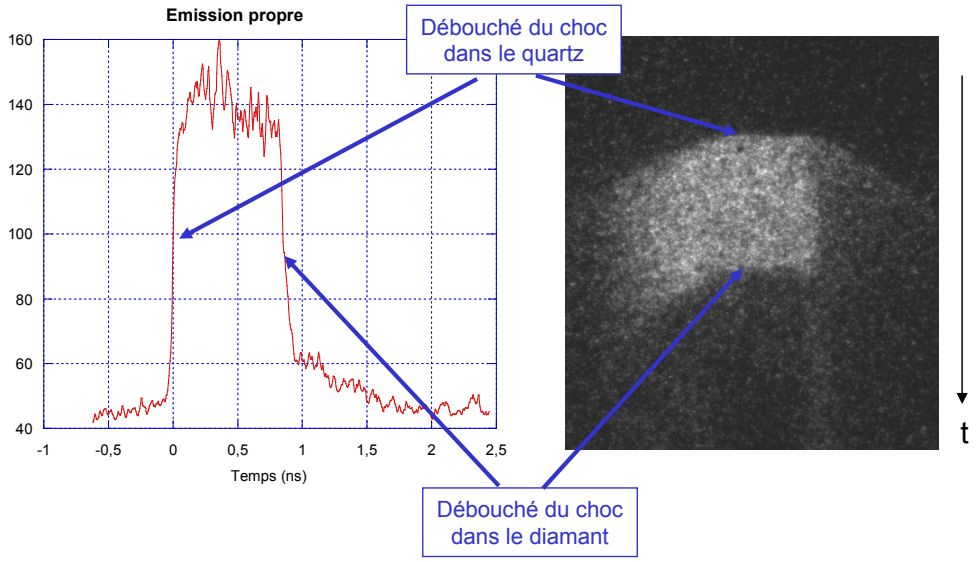


FIG. 7.9 – Mesure de la température le long de l'Hugoniot du diamant. La figure de droite présente une image collectée lors d'un tir et l'image de gauche est le profil de cette image.

La figure 7.10 présente les différentes courbes de fusion données par les théories ainsi que le point estimé d'après les mesures (ligne rouge entre 690 et 910 GPa, 7500 K). La fusion du diamant devrait

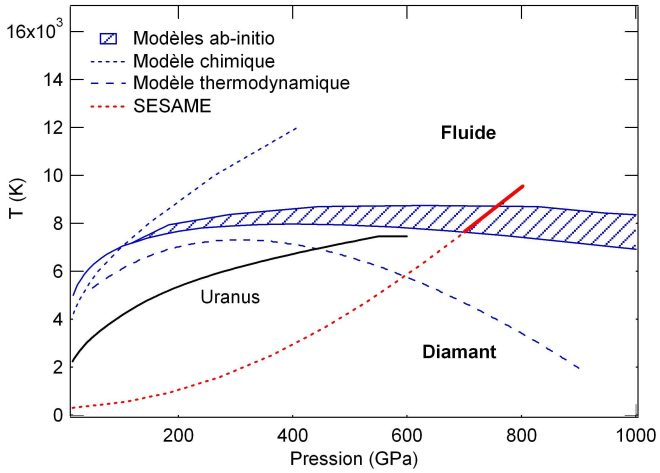


FIG. 7.10 – Courbe de fusion du diamant et Hugoniot. Les courbes de fusion de plusieurs théories sont présentées. Le domaine hachuré correspond au domaine couvert par l'ensemble des mesures ab-initio. La courbe bleue hachurée correspond au modèle thermodynamique de Fried et Howard et la courbe bleue pointillée au modèle chimique de Ghiringhelli. La ligne rouge est l'Hugoniot du diamant obtenu avec les tables SESAME. La zone rouge épaisse est l'estimation du point de fusion provenant des résultats du LULI. La courbe noire est l'isentrope d'Uranus.

se produire à l'intersection de l'Hugoniot et des différentes courbes de fusion. Les courbes ab-initio croisent l'Hugoniot entre 710 et 760 GPa ce qui est accord avec l'expérience. Cependant la discontinuité de volume (relié à la pente de la courbe) n'est pas compatible avec l'écart mesuré expérimentalement. Les courbes sont "trop" plates. Cela est probablement dû aux erreurs intrinsèques introduites par la théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT). Comme souligné précédemment, les approches chimiques,

représentées ici par le modèle de Ghringhelli, ne présentent pas de maximum et donnent ainsi une pression bien trop grande. La courbe de fusion de Fried croise l'Hugoniot à 590 GPa, valeur inférieure aux valeurs expérimentales entre 690 et 900 GPa. Aucun modèle n'apparaît ainsi entièrement satisfaisant.

7.3.4 Evolution de la réflectivité

Les images VISAR furent également utilisées, quand cela était possible, pour estimer la réflectivité du diamant à partir de celle du quartz (voir chapitre 5). La figure 7.11 présente une comparaison entre les données de Bradley et les données du LULI. On retrouve le niveau de saturation autour de 30% et

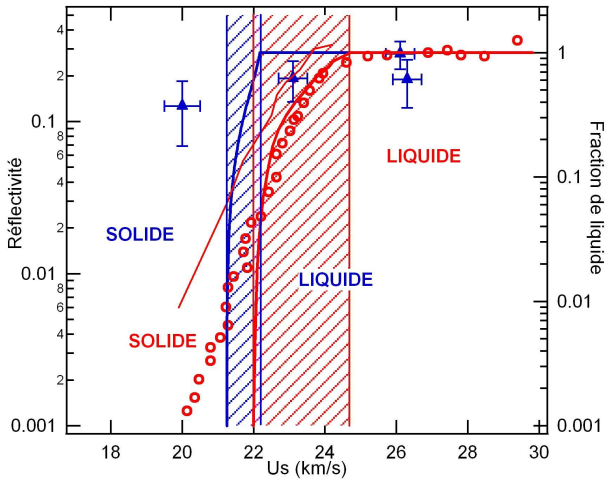


FIG. 7.11 – Evolution de la réflectivité en fonction de la vitesse de choc. Les données en rouge sont les données de Bradley et al. [80]. Elles ont été obtenues à 2ω soit 532 nm. Pour comparer avec les mesures du LULI réalisées à ω, soit 1032 nm, les mesures de Bradley et al. sont ramenés à 1032 nm, courbe rouge fine. La courbe rouge épaisse correspond comme précédemment à la fraction de liquide donnée par le modèle de Van Thiel Ree [81]. Les points bleus sont les points mesurés au LULI 2000. La courbe bleu épaisse correspond à la fraction de liquide donnée par le modèle de Fried et Howard.

étant données les barres d'erreur les résultats sont compatibles avec les mesures précédentes. Le modèle de Fried est différent du modèle de Van Thiel Ree [81]. Il prédit une fusion plus tôt et une augmentation de la fraction de liquide beaucoup plus rapide. Ainsi le diamant devient réfléchissant à la fusion, mais il atteint la saturation plus tard alors qu'il est déjà entièrement liquide depuis longtemps. Selon le modèle considéré, les interprétations sont donc un peu différentes. Le premier point à Us = 20 km/s a une réflectivité légèrement supérieure comparée aux mesures de Bradley. Cette augmentation est peut être dûe à un léger préchauffage lors de ce tir.

7.4 Conséquences astrophysiques

Il apparaît ainsi que les calculs ab-initio donnent une bonne estimation du point de fusion, malgré une sous estimation de la discontinuité de volume. Le domaine de stabilité du diamant est ainsi relativement large. Cela peut avoir des conséquences importantes sur les modèles de planète comme Uranus ou Neptune. On peut voir sur la figure 7.10 que l'isentrope de Uranus [85] ne croise pas la courbe de fusion du diamant des calculs ab-initio. Ainsi en accord avec ce qui était dit avant [80], le diamant qui se précipiterait après la dissociation de CH_4 [5] serait stable jusqu'au centre de la planète.

7.5 Conclusion

Les mesures réalisées au LULI ont permis la détermination d'un point de fusion le long de l'Hugoniot du diamant : 690 GPa < P < 900 GPa. Ce point est accompagné d'une **discontinuité de volume négative** de l'ordre de -8% laissant supposer **l'existence d'un maximum sur la courbe de fusion**. Le modèle thermodynamique de Fried et Howard est compatible avec cette estimation de la discontinuité de volume, mais sous estime le point de fusion, en meilleur accord avec les calculs ab-initio. Ces nouvelles données ont des conséquences importantes sur les modèles de planètes comme Uranus ou Neptune.

Chapitre 8

Hélium

Sommaire

8.1 Motivations **137**
8.1.1 Intérêt fondamental 137
8.1.2 Intérêt astrophysique 138
8.2 Connaissances actuelles sur le diagramme de phase **139**
8.2.1 Equation d'état 139
8.2.2 Ionisation par pression 143
8.3 Résultats **144**
8.3.1 Comparaison avec les données existantes : évolution de P, ρ, T à 1.2 kbar . . 145
8.3.2 Effet de la précompression 146
8.3.3 Ionisation et métallisation 147
8.4 Conclusion **150**

8.1 Motivations

8.1.1 Intérêt fondamental

Bien que l'atome d'hélium soit l'élément le plus simple après l'hydrogène dans le tableau périodique des éléments, ses propriétés à hautes densités sont difficiles à calculer : l'énergie de point zéro des noyaux ne peut pas être négligée, les électrons sont très liés aux noyaux et le calcul de la structure électronique d'un tel isolant et de son évolution sous pression est peu précise dans le cadre de la DFT (sous estimation du gap électronique). La figure 8.1 présente un diagramme de phase hypothétique avec les prédictions de Ebeling et de Winisdoeffer. La métallisation par pression dans la phase solide est particulièrement difficile à estimer à cause d'un très large gap. Dans la phase fluide, les prédictions d'un passage entre un état atomique non ionisé et un plasma sont variés. Winisdoerffer et Chabrier [87] prévoient le passage direct entre un état atomique He et un état doublement ionisé He^{2+} (ou au moins très fortement ionisé). Fortov [86], lui, envisage un passage intermédiaire avec apparition d'ions He^{+}. Même à haute température, aux fortes densités les effets quantiques sont très importants [88].

Aux températures plus élevées, les interactions He-He peuvent être approximées par un potentiel de paire simple ce qui permet le calcul des propriétés thermodynamiques sur un large domaine P-T. Il sert ainsi de système modèle pour l'approche chimique. Il peut donc être utilisé comme système test pour valider la métrologie du quartz.

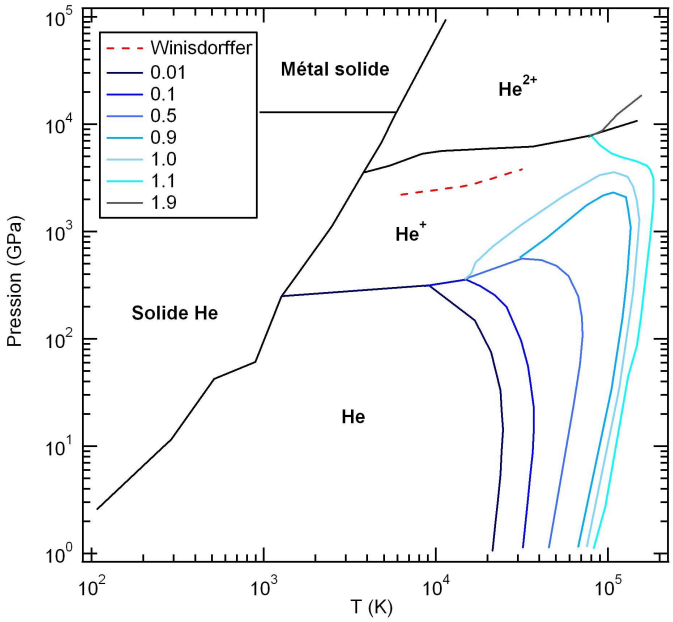


FIG. 8.1 – Diagramme de phase de l'hélium de Ebeling [86]. Les différentes courbes bleues représentent le degré d'ionisation de la molécule He, 2 étant l'ionisation maximale possible. La courbe rouge pointillée est la limite estimée de Winisdoeffer et al. entre une état He et un état He^{2+}

8.1.2 Intérêt astrophysique

L'hydrogène est l'élément le plus abondant de l'univers suivi ensuite par l'hélium. Ces deux éléments sont les constituants principaux de Jupiter et Saturne. Étant donné leur forte densité et leur faible température, l'hélium et l'hydrogène passent d'un état atomique ou moléculaire dans les parties externes à un état complètement ionisé lorsqu'on se rapproche du centre. La caractérisation de la structure de ces deux planètes et de leur évolution au cours du temps dépend directement des propriétés thermodynamiques de ces deux éléments, donc de leurs équations d'état. Saumon et Guillot exposent très bien le problème dans [89] et montrent que le choix de l'équation d'état influence significativement la structure de la planète et son évolution.

Les récents résultats obtenus par compression dynamique sur le deutérium ont permis d'apporter de nouvelles données. Même si les chocs dynamiques génèrent des températures de l'ordre de 20 000 K ce qui est encore trop chaud pour représenter ces planètes (par exemple, à une pression de 1 Mbar, la température de Jupiter est de 6 000 K), cela permet au moins de contraindre un peu mieux les équations d'état existantes et donc de réduire le nombre de possibilités pour décrire les planètes. La figure 8.2 présente plusieurs solutions pour le coeur de Jupiter selon les équations d'état utilisées. On peut voir que le choix de l'équation d'état pour l'hydrogène, mais aussi pour l'hélium a des conséquences directes sur la structure de la planète. Les conséquences sont moins importantes pour le coeur de Saturne, mais elles restent cependant visibles.

Ce problème d'équation d'état de l'hélium et l'hydrogène ne se limite pas à Jupiter et Saturne, mais est valable pour tout objet astrophysique composé majoritairement ou en partie de ces deux éléments. On peut citer par exemple l'atmosphère des naines blanches [90, 91], étoiles en fin de vie et les naines brunes [92], boules d'hydrogène possédant une masse trop faible ($< 8\%$ du Soleil) pour devenir des étoiles et développer des réactions nucléaires en leur coeur.

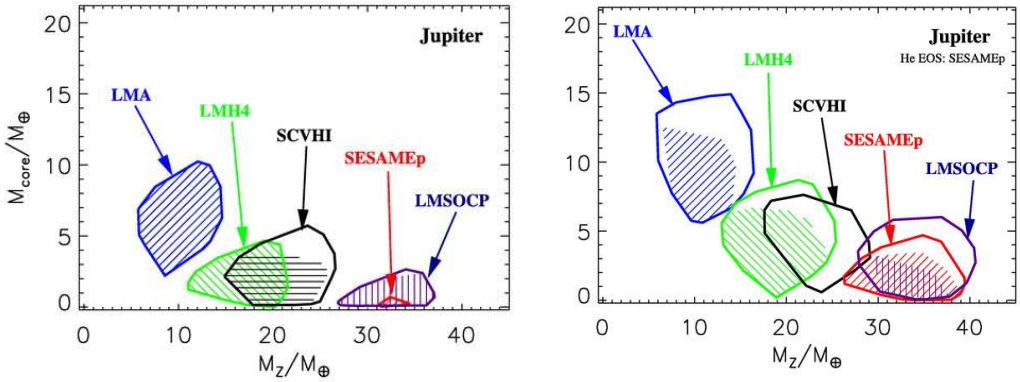


FIG. 8.2 – [89] Masse du coeur de Jupiter M_{core} en fonction de la masse des éléments lourds M_Z (mélangés avec H et He) présents dans l'enveloppe exprimées en masse terrestre $M_\oplus$. Chaque zone, obtenue avec des équations d'état différentes pour H_2, représente un domaine où les moments gravitationnels et le rayon sont respectés. Le moment J2 est respecté dans l'ensemble de la zone délimitée alors que le moment J4 n'est respecté que dans la zone hachurée. LMA, LMH4 et LMSOCP sont des variantes du modèle de mélange linéaire de Ross. SCVHI et SESAMEp sont respectivement l'équation d'état de Saumon-Chabrier et l'équation d'état SESAME. Ces résultats se couplent avec le choix d'une équation d'état pour l'hélium (figure de gauche :SCVH ; figure de droite : SESAME)

Apporter des données expérimentales précises dans ces domaines de pression et de température est indispensable pour une meilleure compréhension de la structure et de l'évolution de ces planètes.

8.2 Connaissances actuelles sur le diagramme de phase

Plusieurs mesures en statique et en dynamique ont déjà été effectuées sur l'hélium. Nous allons présenter ici celles qui nous seront utiles par la suite pour la caractérisation des cibles ou l'analyse des données.

8.2.1 Equation d'état

8.2.1.1 EOS fluide

Mills et al. [93] ont mesuré en 1980 l'équation d'état de He pour une température allant de 75 à 300 K et une pression de 2 à 20 GPa. Ils ont mesuré simultanément la pression, le volume et la température dans l'hélium liquide ce qui a permis de déterminer V(T(K), P(kbar)).

$$V(cm3/mole) = (22.575 + 0.0064655T - 7.2645T^{-0.5})P^{-1/3} + (-12.483 - 0.024549T)P^{-2/3}$$

$$+(1.0596 + 0.10604T - 19.641T^{-0.5} + 189.84T^{-1})P^{-1} \quad (8.1)$$

La figure 8.3 présente l'évolution de la pression en fonction du volume à température ambiante. Par la suite, c'est le fit de Le Toullec que nous utiliserons pour déterminer l'état initial de notre échantillon :

$$V = 23.810P^{-1/3} - 17.833P^{-2/3} + 29.760P^{-1} \quad (8.2)$$

Ce fit inclut les données de Mills, à basses pressions.

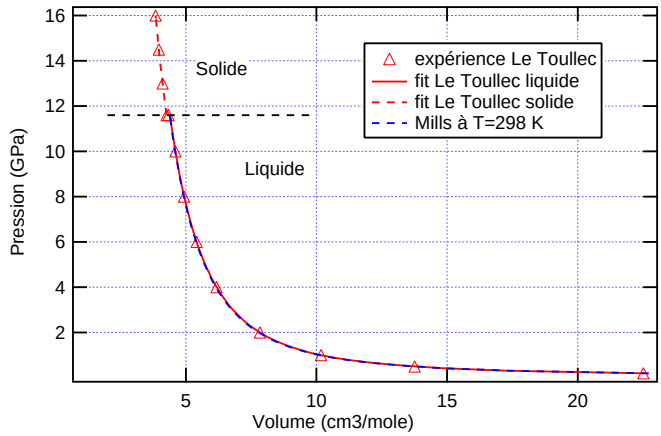


FIG. 8.3 – Pression en fonction du volume à T=298 K : les triangles représentent les points expérimentaux de Le Toullec et al [94]. Les deux courbes rouges sont des fits obtenus en phase solide et liquide. La courbe bleu est le fit des données obtenus par Mills pour T=298K [93].

8.2.1.2 Indice

L'indice de réfraction en fonction de la pression a été mesuré à température ambiante par Dewaele et al. [95] et le Toullec et al. [94]. Le fit donné par Dewaele de l'ensemble de ces résultats est :

$$n = 0.8034 + 0.20256(1 + P)^{0.12763} \tag{8.3}$$

Cette donnée est particulièrement importante pour pouvoir ensuite analyser les images VISAR.

8.2.1.3 Courbe de fusion

Les premières mesures de la courbe de fusion ont été réalisées en 1971 par Crawford et al. de 13 à 60 K. Les mesures se sont ensuite étendues [96, 97, 98, 99, 93, 100]. La figure 8.4 présente l'ensemble de ces mesures.

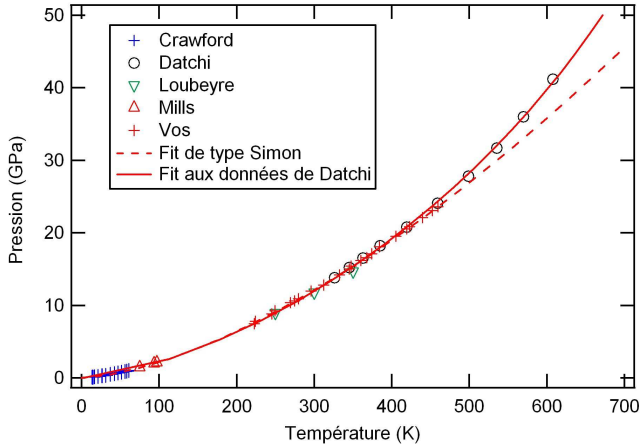


FIG. 8.4 – Courbe de fusion : [96, 97, 98, 99, 93, 100]

8.2.1.4 EOS Hugoniot

Nellis et al. [101] est le premier à avoir réalisé des chocs sur l'hélium. Grâce à un canon à gaz, de l'hélium liquide (4.3 K, 1 atm) a été choqué à une pression de 16 GPa. La figure 8.5 présente les 3 points mesurés.

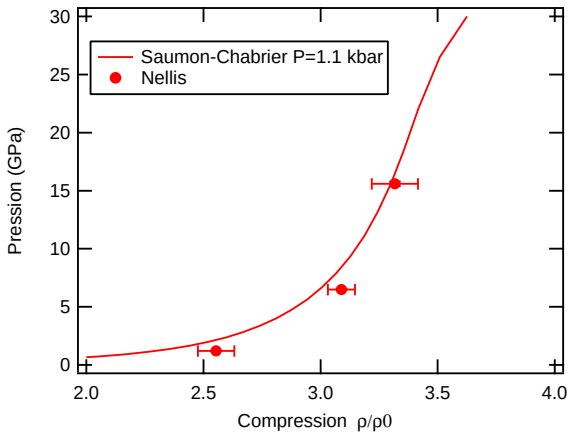


FIG. 8.5 – Compression de l'hélium : points de Nellis. La courbe rouge solide présente les prédictions théoriques de Saumon-Chabrier basées sur ces premiers résultats.

8.2.1.5 Prédictions Hugoniot

EOS Saumon Chabrier Cette équation d'état [12] a été construite pour des applications astrophysiques et en particulier pour des étoiles de faible masse (inférieure à celle de la terre), pour les naines blanches et pour les planètes géantes. Elle couvre un domaine de 2.10 < log(T(K)) < 7 .06 et 4 < log(P(dyn.cm^{-2})) < 19. L'ionisation par pression n'a pas été traitée dans cette EOS. Elle a été traité par la suite par Winisdoerffer et al. [11, 87]. Pour le calcul, le diagramme de phase a été divisé en 2 régions : les fortes densités log$\rho \geq 0.5$ où le modèle de Chabrier 1990 a été utilisé et les faibles densités logρ< 0.5 où un modèle avec une approche chimique et minimisation de l'énergie libre a été utilisée. Le système est composé de 4 espèces : He, He^{+}, He^{2+} et e^{-}. L'énergie libre prend la forme suivante :

$$F(N_{He}, N_{He^+}, N_{He^{2+}}, N_e, V), T) = F_{cintique} + F_{configuration} + F_{DH} + F_{interne} \tag{8.4}$$

1 : F$_{cinetique}$ est donnée par la statistique de Maxwell-Boltzman pour les particules chargées (1er terme)et par l'intégrale de Fermi pour les électrons (2nd terme).

$$F_{cinetique} = k_B T \sum_{i=1}^{3} N_i ln \left(\frac{N_i}{V} \left(\frac{2\pi\hbar^2}{m_i k_B T} \right)^{3/2} \right) - 1 + N_e k_B T \left(\frac{\mu_e}{k_B T} - \theta^{3/2} \int_0^\infty \frac{x^n dx}{e^{x - \frac{\mu_e}{k_B T}} + 1} \right) \tag{8.5}$$

$\theta = \frac{k_B T}{\varepsilon_F}$ est le paramètre de dégénérescence des électrons.

2 : Le terme F$_{configuration}$ provient de l'interaction He-He et a été calculé avec la théorie de perturbation des fluides. Le potentiel de référence $F_{SoftSphere}(\eta)$ utilisé est celui de Ross [102] et est proportionnel à 1/r^{12}.

$$F_{configuration} = F_{SoftSphere}(\eta) + \frac{N_{He}^2}{V} \oint_0^\infty \Phi(r) g_{HS}(r, \eta) d^3 r \tag{8.6}$$

où $\eta = \frac{\pi N_{He}}{6V}\sigma^3$ et σ est le diamètre de la sphère dure. Le second terme est le premier terme perturbatif. $\Phi(r)$ est déterminé expérimentalement [101] et $g_{HS}(r,\eta)$ est la fonction de distribution de paire de Smith et Henderson. A basse température, un terme de correction pour prendre en compte les interactions quantiques est ajouté.

3 : Les interactions entre particules chargées sont prises en compte dans le terme F_{DH}. Un simple potentiel de Debye-Hückel est utilisé. Pour $\log\rho < 0$, les particules sont considérées comme suffisamment éloignées et ne voient donc pas l'électron encore lié à l'atome He^+. Cela simplifie alors l'expression finale. Ce modèle est valable tant que $\Gamma \ll 1$ et surestime les effects coulombiens lorsque Γ est proche de 1.

4 : L'expression de l'énergie libre interne est simplifiée en ne prenant en compte que les états fondamentaux. Tous les états excités sont ignorés.

Les plus grandes incertitudes de ce modèle sont dans les régimes d'ionization par température et par pression comme il avait été souligné au début.

Simulation ab initio Les premières simulations ab-initio sur l'Hugoniot de l'hélium sont très récentes et ont été réalisées par Militzer [103]. Il a réalisé des simulations avec les chemins d'intégrale de monte-carlo (PIMC : Path Integral Monte Carlo). PIMC est une modèle de simulation quantique à température finie. L'hélium est représenté par un système de noyaux et d'électrons qui interagissent par le potentiel coulombien. Tous les effets de corrélations sont inclus ce qui en fait l'une des méthodes les plus fiables disponibles. Cette méthode étant adaptée pour les hautes températures, elle est complétée par des modèles de dynamique moléculaire quantique (DFT) pour les basses températures. La figure 8.6 présente différents Hugoniots construits à partir de ce modèle.

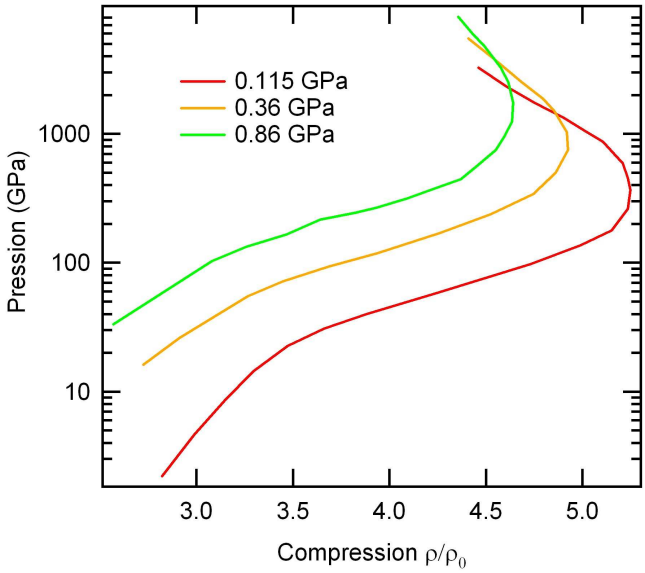


FIG. 8.6 – Hugoniots de l'hélium obtenu par PIMC [103]. Les différentes couleurs des courbes correspondent à des précompressions différentes.

La figure 8.7 présente une comparaison entre les courbes Hugoniot obtenues avec un modèle ab-initio (Militzer) et un modèle chimique (Saumon-Chabrier). Le modèle chimique de Saumon-Chabrier prédit, pour une précompression de 1.15 kbar, une compression maximale de 6.4 alors que le modèle PMIC prévoit une compression maximale de 5.24. Cet écart diminue lorsque la pression initiale aug-

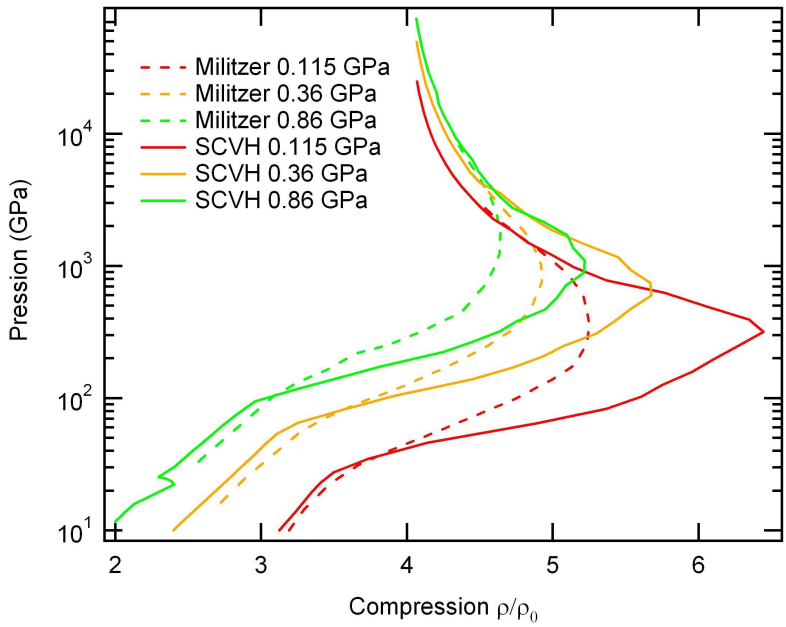


FIG. 8.7 – Comparaison entre Hugoniots obtenues par modèle ab-initio et par modèle chimique pour l'helium. Les courbes pointillés correspondent au modèle ab-initio et les courbes solides au modèle chimique.

mente. Il est de 0.6 pour une précompression de 8.6 kbar alors qu'il était de 1.16 pour une précompression de 1.15 kbar.

8.2.2 Ionisation par pression

8.2.2.1 Ionisation par pression en phase fluide

L'ionization par pression, comme le souligne Saumon et Chabrier [12], présente certaines difficultés dans le contexte de l'approche chimique. En effet aux fortes densités, les ions et molécules sont tellement proches que les électrons se délocalisent et les espèces perdent leurs identités physiques. Les fonctions d'ondes des électrons se recouvrent et les interactions ne peuvent plus être décrites simplement par un potentiel. Le modèle de Winisdoerffer [87] est un modèle chimique semi-analytique où une attention particulière a été donnée pour décrire l'ionization par pression.

Le modèle est basé à nouveau sur la minimisation de l'énergie libre du système où 4 termes sont identifiés : cinétique, configurationnel, interne et quantique.

$$F(N_{He}, N_{He^+}, N_{He^{2+}}, N_e, V), T) = F_{cintique} + F_{configuration} + F_{quantique} + F_{interne} \tag{8.7}$$

Chacun de ces termes est d'abord déterminé pour des systèmes pures et seulement après sont ajoutés des termes pour rendre compte des interactions entre chaque espèce. Les principales différences sont dans les termes de configuration et d'énergie interne. Pour décrire l'interaction He-He, une nouvelle forme de potentiel est adopté [104, 105, 106] :

$$\Phi(r) = \left((1-C) + \frac{C}{1+D\rho}\right) V_{Cerperley}(r) \tag{8.8}$$

A hautes densités un effet à N-corps est présent et adoucit la partie repulsive du potentiel. Cet effet est pris en compte par l'ajout du terme $(1-C) + \frac{C}{1+D\rho}$ au potentiel. Les deux termes C et D sont ajustés

pour reproduire les données expérimentales de vitesse du son de Le Toullec [107]. La figure 8.8 présente le potentiel d'interaction utilisé. Pour le plasma partiellement ionisé He^+ et e^-, un potentiel de Yukawa en $e^{-k_s r}/r$ est utilisé.

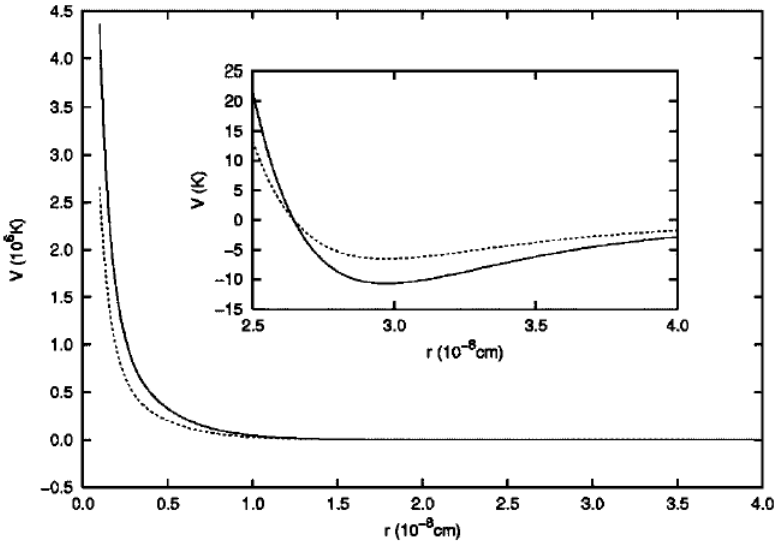


FIG. 8.8 – Potentiel d'interaction entre deux atomes d'hélium [87] : la courbe solide est obtenue sans correction à N corps et la courbe en pointillés avec la correction à N-corps à une densité de 10 g/cm^3

Le terme d'énergie interne est modifié pour prendre en compte l'existence d'états excités. Le formalisme de Hummer [10] avec l'expression d'une probabilité d'occupation pour chaque niveau est utilisé.

Les interactions entre espèces de différente nature sont ensuite modélisées. Un modèle de sphères dures est utilisé pour les interactions entre He, He^+ et He^{2+} et un modèle plus simple pour l'interaction longue distance entre He^+ et He^{2+}. De plus, la présence de charges dans le voisinage d'espèces ayant des états liés entraînent des effects de polarisation et un effet Stark peut apparaître. Ces deux effects sont pris en compte dans ce modèle.

Ce modèle prédit une pression d'ionisation à P = 20 Mbar avec le passage direct d'un fluide atomique He à un fluide ionisé He^{2+} ou au moins à un état très ionisé sans passage par He^+.

8.2.2.2 Mesures de conductivité des russes

L'équipe de Fortov et Ternovoi [108, 109] a réalisé une série de mesures de conductivité de l'hélium (chocs multiples jusqu'à une pression de 200 GPa et une densité de 1.4 g/cm3) (zone encadrée en gris sur la figure 8.17). Les résultats de ces mesures en fonction de la densité sont présentées sur la figure 8.9. Les mesures sont représentées par les carrés blancs. Il faut noter ici que l'état thermodynamique de l'hélium est calculé par une simulation hydrodynamique de l'expérience. La mesure porte donc seulement sur la conductivité.

8.3 Résultats

14 points ont été obtenus sur l'hélium avec des précompressions allant de 0.11 à 1.15 GPa. Lorsque le front de choc n'est pas réfléchissant, la vitesse de choc est déterminée par mesure du temps de transit dans l'échantillon à partir des images VISAR et des images SOP.

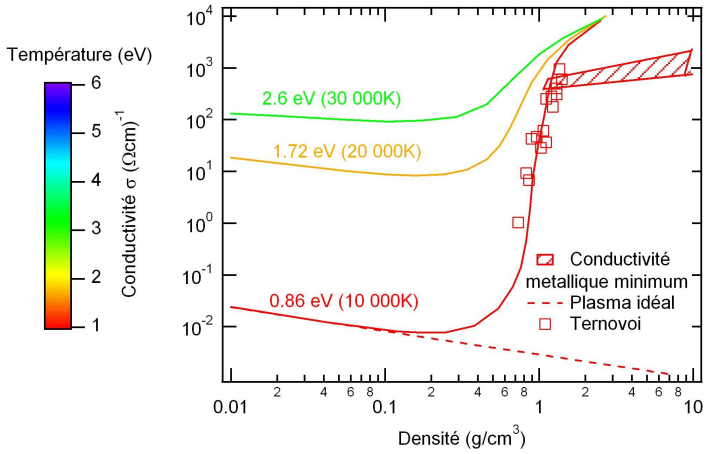


FIG. 8.9 – Conductivité de l'hélium (mesurée) en fonction de la densité (calculée). Les courbes solides correspondent au modèle de Ebeling [108, 109] et la couleur de chaque courbe correspond à une température donnée par l'échelle de couleur à gauche.

P_0 (GPa)	ρ_0	$U_{S_{qz}}(km/s)$	$U_{S_{he}}(km/s)$	$U_{p_{he}}(km/s)$	P (GPa)	ρ/ρ_0	R	T (eV)
0.113	0.1221	24.9(3)	33.9(4)	28.4(10/11)	117(14/16)	6.2(13/16)	15.4()	5.98(109)
0.124	0.1302	21.6(3)	28.0(6)	23.5(8/9)	86(10/11)	6.2(16/17)	7.5()	3.84(64)
0.2	0.1774	21.8(3)	28.0(7)	22.7(7/8)	113(10/11)	5.3(10/14)	5.3()	4.08(71)
0.28	0.2157	22.1(3)	28.8(7)	22.4(6/7)	139(10/15)	4.5(8/9)	8()	3.47(56)
0.31	0.228	17.5(2)	22.8(6)	16.2(5)	85(7/10)	3.5(5)	0	2.51(44)
0.52	0.2957	17.54(2)	23.1(7)	15.6(4/5)	107(10/12)	3.1(3/4)	0	2.31(40)
1.113	0.4098	13.4(2)	10.3 Up(5)	16.3(40)	70(15/18)	2.7(9/59)	0	0.81(10)
1.12	0.4108	19.5(3)	25.8(8)	16.9(5)	180(18/21)	2.9(3)	2.5()	2.17(32)
1.17	0.4179	17.9(2)	23.0(13)	15.2(5)	147(20/21)	2.9(4)	0	1.80(26)
1.25	0.4288	20.4(3)	25.7(9)	18.0(5)	199(20/21)	3.3(4/5)	1.2	2.88(43)
0.125	0.131	17.3(2)	21.9(1)	17.5(7/8)	50(7/8)	5.0(9/13)	0	2.62(50)
0.51	0.2957	22.8(3)	29.8(3)	22.2(5)	196(12/11)	3.9(5/6)		
1.15	0.4151	21.9(1)	27.8(1)	19.9(15)	231(20/25)	3.5(7)	9.8(16)	3.53(91)
0.127	0.1324	21.7(0)	28.9(0)	23.5(3/4)	90(11/14)	5.4(14/18)	0	3.79(96)

TAB. 8.1 – Ensemble des points obtenus sur l'hélium. Les nombres indiqués entre parenthèses sont l'erreur sur le dernier chiffre du résultat. L'erreur sur la pression initiale est de 0.2 kbar. Elle entraîne ainsi une erreur sur la densité initiale. Cette erreur n'est pas indiquée dans le tableau, mais elle a été prise en compte dans l'évaluation de l'ensemble des barres d'erreur. Quand cette barre d'erreur n'est pas symétrique, l'erreur négative et positive sont indiquées (-/+). Les deux derniers points sont encore en pour d'analyse pour les valeurs de réflectivité et de température.

8.3.1 Comparaison avec les données existantes : évolution de P, ρ, T à 1.2 kbar

La figure 8.10 présente les points obtenus de Nellis ainsi que nos points expérimentaux. Les données de Nellis ont été obtenues le long de l'Hugoniot principale à partir d'helium cryogénique. Ainsi pour pouvoir comparer les données entre elles, une précompréssion de 0.12 GPa a été choisie. En effet, l'hélium, à cette pression, a la même densité que l'hélium cryogénique. Ainsi le point initial de l'hugoniot est bien le même et les données correspondent à la même courbe Hugoniot (modulo une différence d'énergie thermique entre 20 et 300 K qui peut être négligée). Plusieurs hugoniots théoriques ont été représentés : SESAME, Militzer (modèle ab-initio) et Saumon-Chabrier (modèle chimique). On peut voir que le modèle de Saumon-Chabrier (SC) est en très bon accord avec les points expérimentaux.

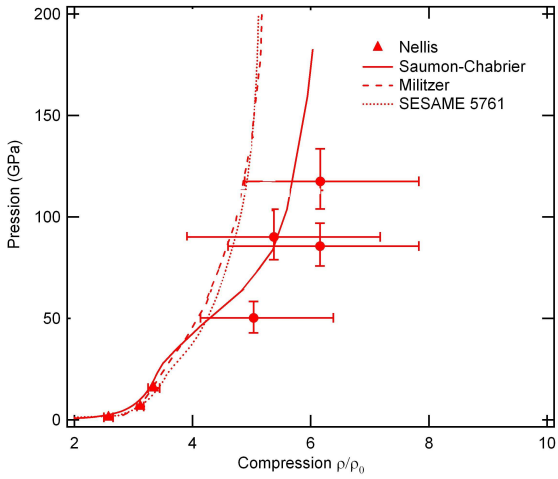


FIG. 8.10 – Pression vs compression pour une pression initiale de 0.12 GPa

La figure 8.11 présente les mêmes données dans le plan T-P. A nouveau, on observe un très bon accord entre les données expérimentales et le modèle SC.

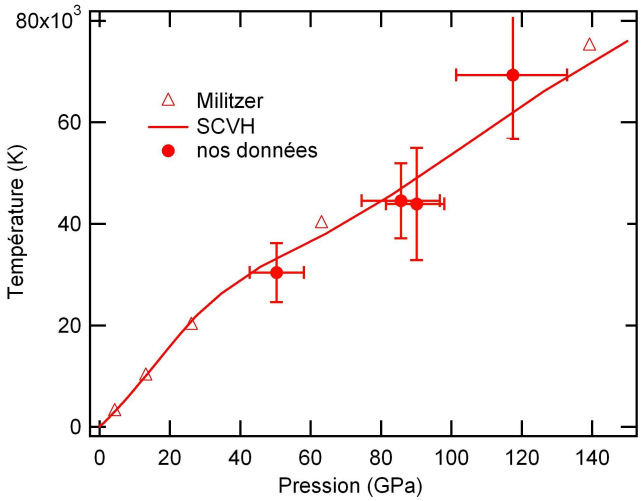


FIG. 8.11 – Température vs pression pour une pression initiale de 0.12 GPa

8.3.2 Effet de la précompression

Les figures 8.12 et 8.13 présentent dans le plan P-Compression et le plan T-P deux Hugoniots à des précompressions de 0.12 GPa et 1.1 GPa. Le maximum de compression le long de l'Hugoniot est relié aux excitations électroniques entraînant l'apparition d'électrons libres [103]. Ce maximum décroît lorsque la pression initiale augmente. En effet l'augmentation de la densité initiale entraîne sous des conditions de chocs des interactions plus fortes. On observe alors une augmentation de la pression rendant le matériau moins compressible. Ce maximum n'a cependant pas encore pu être observé dans nos mesures. Un laser plus puissant ainsi qu'une meilleure conversion énergie laser/choc est nécessaire

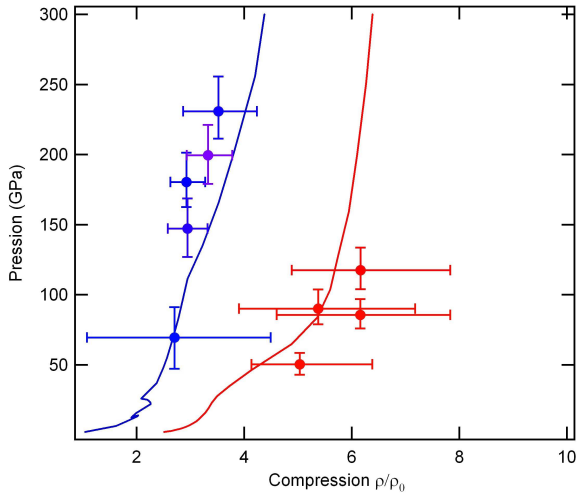


FIG. 8.12 – Pression vs compression pour une pression initiale de 0.12 GPa (rouge) et 1.1 GPa (bleu). Les courbes ont été obtenues à partir du modèle de Saumon-Chabrier.

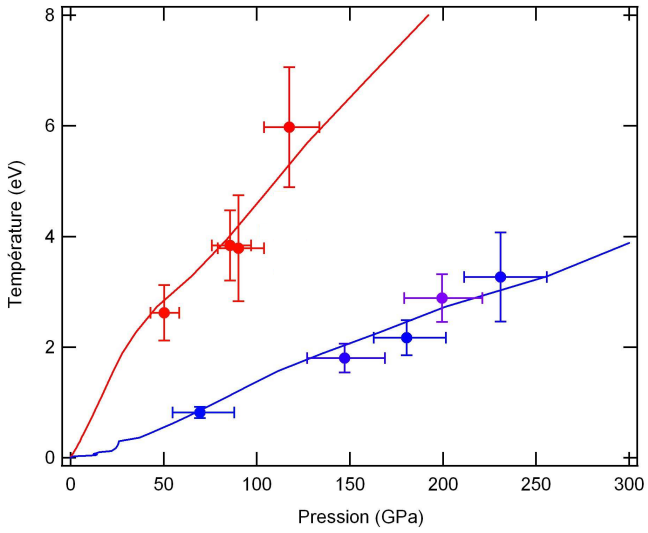


FIG. 8.13 – Température vs pression pour une pression initiale de 0.12 (rouge) et 1.1 (bleu) GPa. Les courbes ont été obtenues à partir du modèle de Saumon-Chabrier.

pour atteindre des pressions plus élevées et observer le maximum de compression. Pour le calcul de Militzer, il est de de 5.24 et il est de 6.4 pour le modèle de Saumon-Chabrier.

8.3.3 Ionisation et métallisation

La réflectivité a été déterminée à partir des images VISAR par Jon Eggert en utilisant le traitement des franges parasites comme présenté chapitre 4. L'ensemble des valeurs trouvées est récapitulé dans le tableau 8.1. Les figures 8.14 et 8.15 représentent les points obtenus dans les plans Température-Pression et Réflectivité-Température. On voit ainsi que très peu de points réfléchissants ont été mesurés. Il semble que l'ionisation observée soit essentiellement due à la température. Il faut une précompression beaucoup

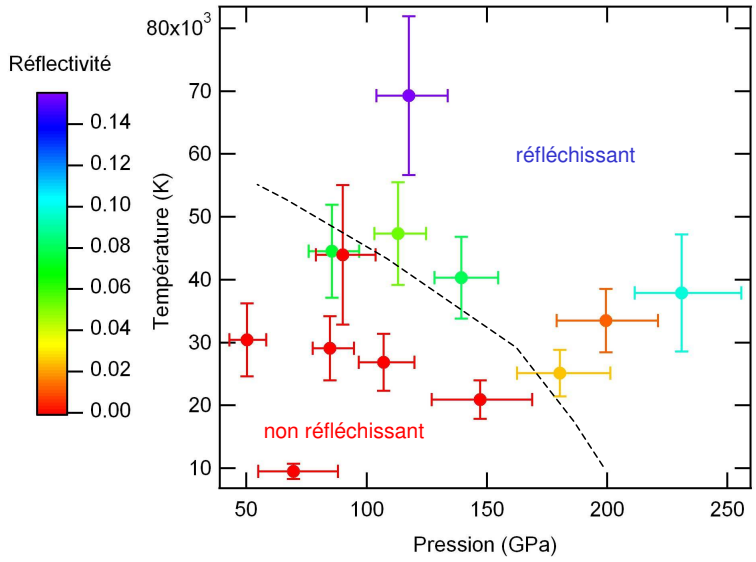


FIG. 8.14 – Réflectivité de l'hélium en fonction de la température et de la pression

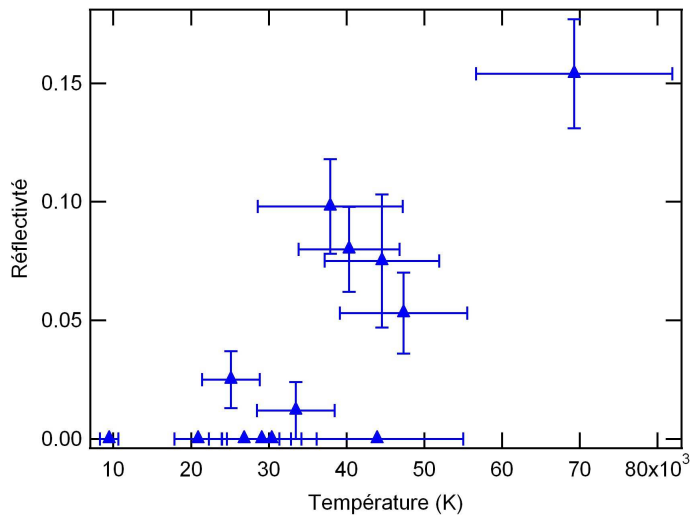


FIG. 8.15 – Réflectivité de l'hélium en fonction de la température

plus forte (> 10 GPa) pour atteindre le domaine d'ionisation en pression.

Les figures 8.16 et 8.17 présentent une comparaison entre nos données et celles obtenus par Ebeling et al. La conductivité et la fraction d'ionisation ont été calculées à partir du modèle de Drude présenté à la fin du chapitre 2. La fraction d'ionisation est déterminée de telle manière que la réflectivité théorique calculée à partir des indices réels et imaginaires soit égale à la réflectivité mesurée. Le libre parcours moyen des électrons est pris égal à la distance interatomique (critère de Ioffe-Regel). Les deux hypothèses (électrons totalement dégénérés ou classiques) ont été examinées. Dans les deux cas, on trouve que la densité électronique est inférieure ($< n_F$) à la densité de Fermi. On est donc proche d'un comportement classique. Cependant la différence entre les deux densités n'est pas suffisante pour exclure totalement le comportement dégénéré. Un calcul exact devrait donc prendre en compte que les électrons

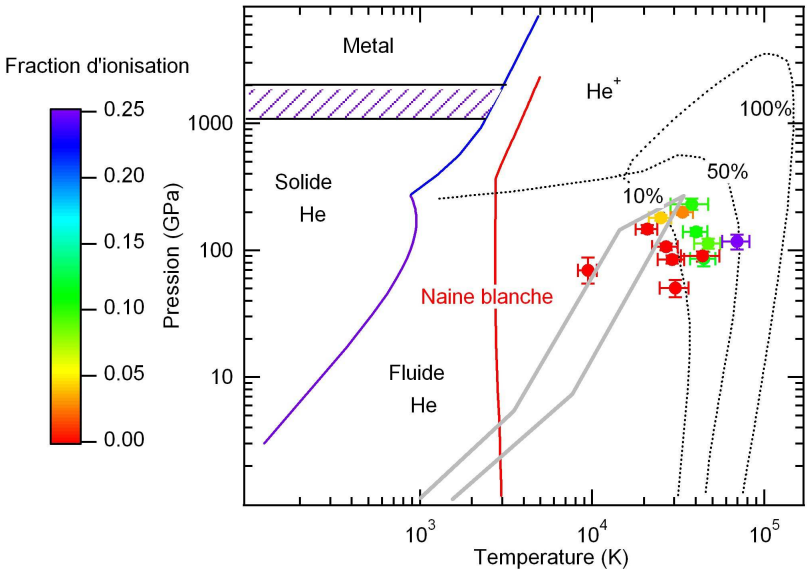


FIG. 8.16 – Fraction d'ionisation de l'hélium dans le plan P-T. Les courbes pointillées fines présentent les fractions d'ionisation calculé par Ebeling à partir des mesures de Ternovoi et al. (zone entourée par la courbe épaisse grise).

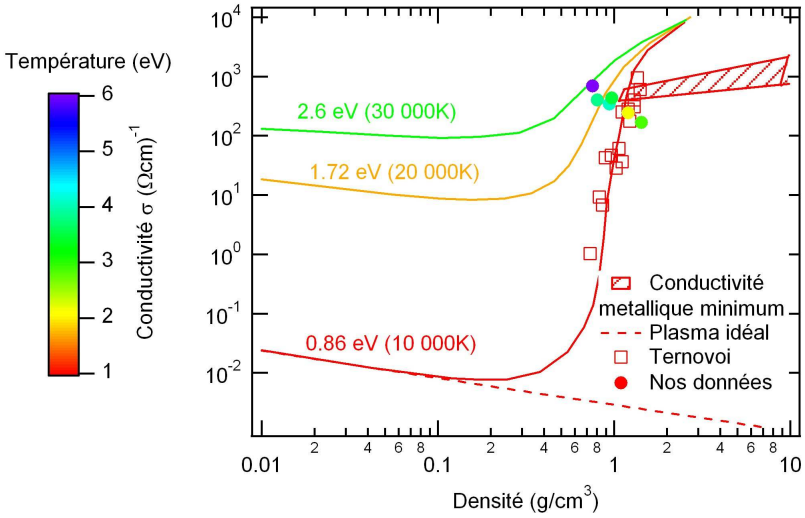


FIG. 8.17 – Conductivité en fonction de la densité. Les courbes solides correspondent au modèle de Ebeling [108, 109]. La couleur des points et des courbes correspond à une température donnée par l'échelle de couleur à gauche.

sont partiellement dégénérés. Cependant pour simplifier le calcul, les points présentés ont été obtenus dans l'hypothèse d'un comportement uniquement classique. Les valeurs ainsi obtenues sont présentées dans le tableau 8.2.

Nos mesures prédisent une fraction d'ionisation plus faible que le modèle de Ebeling : le point violet correspond à une ionisation de 25% alors qu'il est situé sur la courbe théorique de 50%. Cela se manifeste au niveau de la conductivité par une conductivité plus faible pour la même température et densité. Il se peut que notre modèle de conductivité soit un peu simple, mais il se peut aussi que la température soit sous-estimée dans le modèle de Ebeling. L'ionisation aurait alors lieu à des températures plus élevées ce qui serait compatible avec nos mesures.

ρ_f(g/cm^3)	R	T (eV)	% ionisation	$\sigma_{classique}$
0.75	15.4	5.98	25	691
0.8	7.5	3.84	12	400
0.94	5.3	4.08	9	346
0.97	8	3.47	11	437
0.79	0	2.51	0	
0.91	0	2.31	0	
1.11	0	0.81	0	
1.20	2.5	2.17	4	246
1.23	0	1.80	0	
1.42	1.2	2.88	3	167
0.66	0	2.62	0	
1.15			0	
1.46	9.8	3.53	10	573
0.71	0	3.79	0	

TAB. 8.2 – Conductivité de l'hélium obtenue en supposant un comportement classique. Les deux derniers point du tableau sont encore en cours d'analyse. La réflectivité finale pourra être légèrement différente.

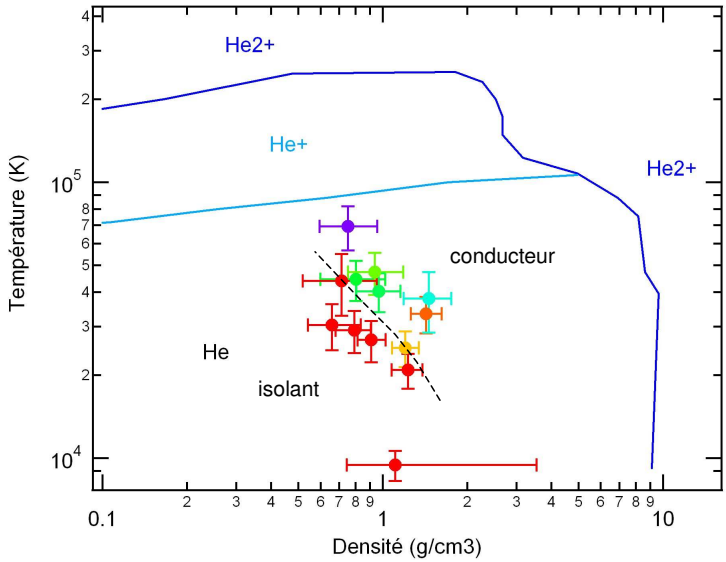


FIG. 8.18 – Diagramme de phase de l'hélium [87]. La couleur des points expérimentaux représente la réflectivité.

La figure 8.18 présente les résultats obtenus avec les prédictions de diagramme de phase de Winisdoeffer. On voit à nouveau que nous sommes loin du domaine de l'ionisation en pression.

8.4 Conclusion

L'hélium dense est un système simple sur un grand domaine de densités et devrait être bien décrit par l'approche chimique. Nos données sont en très bon accord avec le **modèle de Saumon-Chabrier**. Cet accord, avant les effets de l'ionisation en pression, montre la **validité de la métrologie du quartz** qui est utilisée.

Deux effets intéressants sont mis en évidence :

- une **diminution du maximum de compression** en fonction de la précompression initiale. Ce comportement est prédit par les modèles (Saumon-Chabrier et ab-initio). D'après Militzer, cet effet est dû au comportement du gaz d'électrons.

- une **ionisation principalement en température**. L'ionisation en pression nécessitera des précompressions de 10 GPa.

Chapitre 9

Hydrogène

Sommaire

9.1 Un intérêt fondamental et astrophysique 153
9.2 Connaissances actuelles sur le diagramme de phase 154
9.2.1 Equation d'état 154
9.2.2 Ionisation 156
9.2.3 Calculs théoriques 158
9.3 Résultats 160
9.3.1 Objectifs des mesures 160
9.3.2 EOS H2 et D2 161
9.3.3 Effet de la précompression 164
9.3.4 Métallisation 164
9.4 Conséquences astrophysiques 168
9.5 Conclusion 169

9.1 Un intérêt fondamental et astrophysique

L'hydrogène est l'élément le plus abondant de l'univers et représente un système phare pour la physique des hautes pressions. Bien que très simple dans sa structure (un électron + un proton), il présente un diagramme de phase complexe (figure 9.1) et suscite encore de nombreuses recherches tant sur le point de vue théorique qu'expérimental.

En phase solide, l'hydrogène est dominé par les effets quantiques [110]. Il se présente sous forme d'un cristal dans lequel les degrés de rotation des molécules varient d'une phase à l'autre (voir figure 9.1). A plus hautes pressions, ce solide H_2 devrait devenir un métal H avec des propriétés quantiques many-body inédites [113].

A plus hautes températures, on croise la courbe de fusion, passant alors d'une phase solide à une phase liquide. Cette courbe de fusion a un maximum théorique vers 100 GPa qui, selon les théories, correspond soit à un changement de structure dans le fluide [114] (passage d'un fluide moléculaire à un fluide atomique), soit à un changement des interactions moléculaires qui se produirait de manière plus rapide dans le fluide que dans le solide en fonction de la pression.

A très hautes températures, toutes les théories présentent, pour des conditions de pression et de température qui peuvent légèrement varier, le passage d'un fluide moléculaire à un fluide métallique. Cependant, il existe plusieurs hypothèses sur la nature de cette transition (Plasma Phase Transition PPT) :

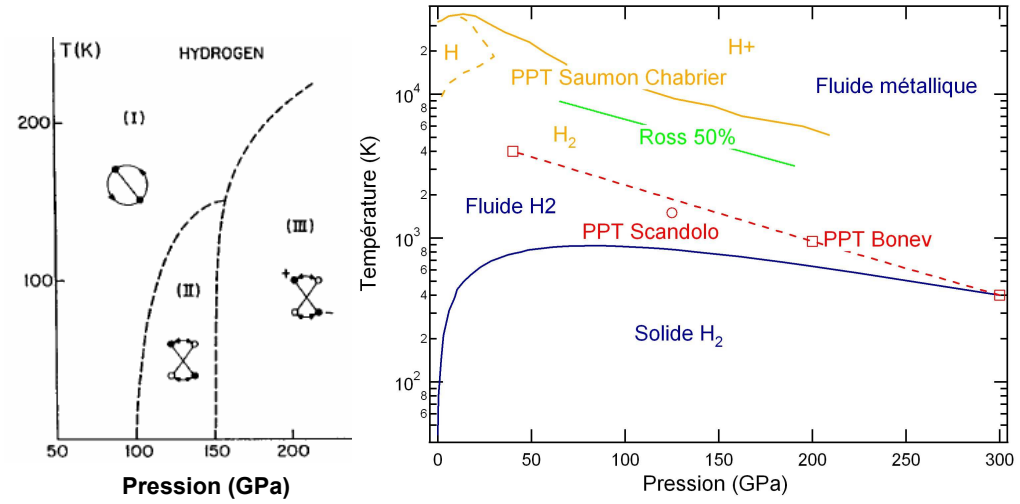


FIG. 9.1 – Diagramme de phase théorique de l'hydrogène. La figure de gauche présente les résultats à basses températures [110] et celle de droite à hautes températures. La courbe bleue solide est la courbe de fusion calculée par Bonev [111]. Les courbes oranges correspondent aux prédictions de Saumon et Chabrier. La courbe verte représente le passage continue d'un milieu moléculaire vers un milieu métallique donnée par Ross [112]. Sur la courbe, le milieu est constitué de 50% de molécules et de 50% de H^+ et e^-. La courbe rouge en pointillés représente la transition du premier ordre entre un état conducteur et un état isolant calculée par Bonev [111].

transition du premier ordre comme semble le suggérer les modèles de Bonev [111], Scandolo [114] et Saumon et Chabrier [115] ou une transition continue comme dans le modèle de Ross [112].

Du point du vue astrophysique, l'hydrogène est le constituant le plus abondant de l'univers. Il constitue 90% des intérieurs de Jupiter et de Saturne. Connaître ainsi son équation de d'état est une donnée fondamentale pour le développement des codes d'astrophysique. Le problème de l'incertitude sur l'équation d'état d'H_2 a déjà été développé en introduction du chapitre sur l'hélium. C'est réellement en parallèle que ces deux systèmes doivent être étudiés pour permettre une meilleure compréhension du système solaire.

9.2 Connaissances actuelles sur le diagramme de phase

Plusieurs mesures en statique et en dynamique ont déjà été effectuées sur l'hydrogène. Comme pour l'hélium, nous allons présenter ici celles qui nous seront utiles par la suite pour la caractérisation des cibles ou l'analyse des données.

9.2.1 Equation d'état

9.2.1.1 EOS fluide

De la même manière que pour l'hélium, Mills et al. ont mesuré en 1977 l'équation d'état de l'hydrogène fluide pour une température allant de 75 K à 307 K et une pression allant de 2 à 20 kbar. Cette équation d'état fluide a été utilisée pour déterminer la densité initiale de l'hydrogène en fonction de la pression initiale, soit :

$$V = 1.38 + 5.72(P(GPa) - 0.0545)^{-0.405} \tag{9.1}$$

Cette expression correspond à un fit des données de Mills à 300K.

9.2.1.2 Indice

L'indice de réfraction en fonction de la pression a été mesuré à température ambiante par Dewaele et al. [95] . Ces données sont reproduites par l'expression suivante :

$$n = 0.949 + 0.06829(1 + 11.8P)^{0.2853} \tag{9.2}$$

Cette donnée est importante pour pouvoir ensuite analyser les images VISAR.

9.2.1.3 Courbe de fusion et hautes températures

La figure 9.2 présente les données expérimentales existantes dans le domaine des hautes températures-hautes pressions. Il n'existe pour le moment aucune donnée expérimentale sur l'existence d'un maximum sur la courbe de fusion. Les données correspondant au passage d'un état isolant à un état conducteur sont encore peu nombreuses.

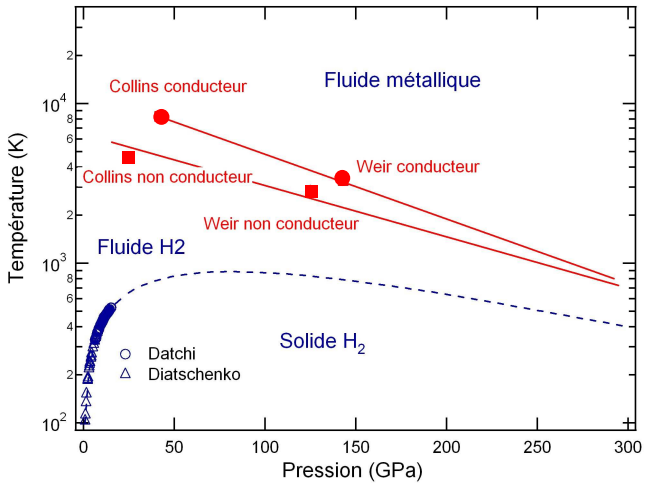


FIG. 9.2 – Diagramme de phase expérimentale de l'hydrogène à hautes températures. Les triangles et ronds bleus sont les points obtenus sur la courbe de fusion par Diatchenko [116] et Datchi [97] respectivement. La courbe pointillée bleue est la courbe théorique de Bonev [111]. Elle ne sert ici que de guide pour les yeux. Il n'existe pour le moment aucune donnée expérimentale prouvant l'existence du maximum. Les carrées rouges correspondent au début de l'état conducteur et les ronds rouges représentent le début de la saturation des mesures de réflectivité de Collins [27] et le début de saturation des mesures de conductivité de Weir [117]. La transition entre les deux est supposée continue [117]. Les deux lignes rouges sont des guides pour les yeux et représentent ainsi le passage continue d'un état isolant à un état conducteur.

9.2.1.4 Controverse sur l'hugoniot du D2

Depuis peu de temps, l'Hugoniot du deuterium est le sujet d'une grande polémique. Au début des années 90, Nellis [118] mesura l'Hugoniot du deutérium par canon à gaz jusqu'à 20 GPa et Hemley [119] jusqu'à 50 GPa en phase solide par diffraction X. L'équation d'état de l'hydrogène paraissait alors acquise. A très haute densité dans la phase métallique ou plasma, les descriptions théoriques semblaient elles aussi acquises. L'hydrogène était métallique et avait pour limite l'équation d'état d'un gaz d'électrons. Les tables d'équation d'état, comme celle SESAME, étaient basées sur des descriptions théoriques bien établies en physique de la matière condensée (modèle de Gruneisen) et en physique des plasmas (modèle de Thomas-Fermi). Quelques années plus tard, des mesures par choc laser [120, 27]

donnèrent des résultats très différents avec un maximum de compressibilité de 6-7 non prévu par les tables d'équation d'état. Ces nouveaux résultats ont alors relancés complètement le débat et ont motivé de nouveaux travaux théoriques. Les méthodes ab-initio reproduisent un maximum de 4.5, alors que les modèles chimiques prédisent eux un maximum à 6. La figure 9.2.1.4 présente les résultats expérimentaux et les courbes théoriques des différents modèles.Les résultats récents de Belov et al. [121] semblent confirmer une compression inférieure à 6.

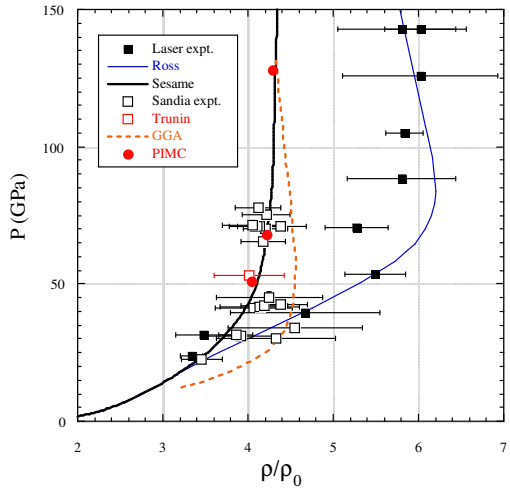


FIG. 9.3 – Hugoniot du deutérium : les carrés vides ont été obtenus par Z-pinch [122]. Les carrées pleins sont les expériences lasers [27] et [120]. Les lignes représentent les différentes prédictions théoriques.

Cette situation assez confuse tant sur le point expérimental que théorique a permis de souligner deux difficultés importantes : la difficulté de telles mesures avec l'importance de bien estimer les barres d'erreur et la difficulté théorique de décrire un système entre la physique du solide et la physique des plasmas. Dans cette région intermédiaire les phénomènes de dissociation et d'ionisation produisent un mélange complexe d'électrons, d'ions, et de molécules. La densité électronique est fortement inhomogène et le paramètre de dégénérescence électronique et le paramètre de couplage sont proche de 1. Aucun de ces effets de densité ne peut donc être considéré comme une petite perturbation. Il est couramment admis que des plasmas très denses seront dominés par l'énergie cinétique des électrons et donc bien décrits par le modèle Thomas-Fermi. Cependant dans ces plasmas très denses des effets many-body complexes sont également attendus.

9.2.2 Ionisation

9.2.2.1 Mesure du gap dans la phase solide

La métallisation de l'hydrogène est un problème majeur depuis plusieurs années. Dans le solide moléculaire, les deux électrons remplissent complètement le niveau $1s^2$ de la molécule rendant ainsi le solide moléculaire isolant. Wigner et al. [123] ont prédit en 1935 que le solide isolant moléculaire devait se transformer, pour des pressions suffisamment fortes, en un solide monoatomique conducteur. Les estimations varient entre 25 et 2000 GPa. Il a ensuite été montré que le solide H_2 à T=0K pourrait devenir métallique dans une phase moléculaire par un recouvrement des bandes de valence et de conduction. C'est seulement à des pressions encore supérieures que le solide deviendrait monoatomique. Cette transition n'a pas encore été observée expérimentalement à température ambiante et jusqu'à 360GPa [124, 125].

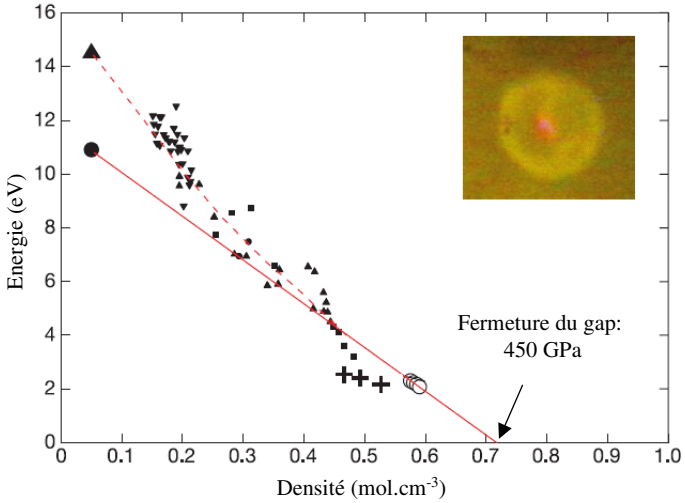


FIG. 9.4 – Evolution du gap dans la phase solide de l'hydrogène (pour plus de détails sur la signification des symboles, se référer à [125])

Loubeyre et al. [125] ont effectué un ensemble de mesures optiques sur l'hydrogène solide à 100 K jusqu'à une pression allant jusqu'à 320 GPa. Le vibron de la molécule H_2 est présent jusqu'à 316 GPa et le solide devient complètement opaque à 320 GPa. Ces mesures observées sont caractéristiques de la fermeture d'un gap électronique direct. L'évolution de ce gap a été déterminé en fonction de la densité (figure 9.4) et une extrapolation de ces mesures prédit une fermeture du gap (et donc le passage à un solide métallique) à une pression de 450 GPa.

9.2.2.2 Metallisation dans la phase fluide

Dans la phase fluide, une première expérience de chocs simples sur le deutérium [118] a permis à partir de mesures de conductivité entre 2900 et 4600 K une estimation du gap électronique E_g : E_g=11.7 eV à 7.5 cm^3/mol

Des expériences de chocs multiples ont ensuite été réalisées et les mesures de conductivité électrique [118, 117] indiquent que l'hydrogène devient métallique à 140 GPa et environ 3000K. Entre 93 et 120 GPa, l'hydrogène est semi-conducteur et on peut fitter les données par :

$$\sigma = \sigma_0 e^{-E_g(\rho)/2k_BT} \tag{9.3}$$

où σ est la conductivité électrique, σ_0 est considérée indépendante de la densité dans ce régime et $E_g(\rho)$ est le gap électronique. On obtient alors :

$$E_g(\rho) = 0.91 - (67.7)(\rho - 0.3) \tag{9.4}$$

avec E_g en eV, ρ en mol H_2/cm^3 et σ_0=140 Ωcm^{-1}. La figure 9.5 présente les énergies caractéristiques mesurées en fonction de la densité. La densité de métallisation est déterminée lorsque le gap E_g est égal à k_BT. Cela donne donc, d'après la figure 9.5, une valeur de 0.32 mol H_2 cm^{-3}. A ces densités et températures, il est très probable que l'hydrogène soit dissocié. La densité de métallisation serait donc proche de 0.64 mol H/ cm^3 à 2600 K.

Critère de Herzfeld Dans le modèle le plus simple, la densité de métallisation est donnée par le critère de Herzfeld [127] qui ne dépend que de la polarisabilité de la molécule (ou atome). Cette approche est

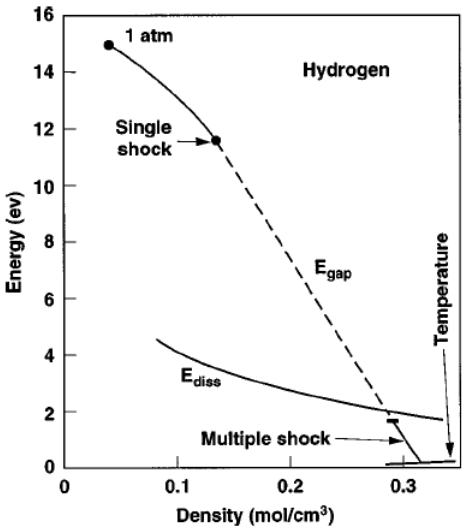


FIG. 9.5 – Energies caractéristiques en fonction de la densité en mol/cm^3 de H_2 [126]. L'hydrogène est supposé moléculaire. L'évolution de E_{gap} provient de [118] et de l'équation 9.4 ([126]). E_{diss} est l'énergie de dissociation calculée par le modèle de Ross.

basée sur le modèle de Lorentz-Lorentz qui relie la réfractivité à l'indice de refraction par la formule :

$$\frac{n^2-1}{n^2+2} = R/V \tag{9.5}$$

où R est la réfractivité molaire et V le volume molaire. On voit ainsi que R/V ne peut pas être plus grand que 1. Lorsque R/V=1, n devient infini et les électrons liés deviennent libres. On passe alors à l'état métallique. Si on considère un atome constitué d'une charge positive ponctuelle entourée d'un nuage électronique uniforme de rayon r, on peut montrer que la polarisibilité α est :

$$\alpha = r^3 \tag{9.6}$$

et que

$$R = \frac{4}{3}\pi N\alpha = \frac{4}{3}\pi N r^3 \tag{9.7}$$

On a alors passage à l'état métallique lorsque :

$$\frac{R}{V} = 1 = \frac{4}{3}\pi\rho r^3 \tag{9.8}$$

La polarisabilité de l'atome d'hydrogène donne une densité de métallisation de 0.595 mol H.cm^{-3} [128] ce qui est de l'ordre de grandeur de 0.64 trouvé précédemment.

9.2.3 Calculs théoriques

La question la plus répandue sur l'hydrogène fluide est l'existence ou non d'une transition de phase plasma PPT du premier ordre. Pour le moment, les densités et températures présentées dans les calculs précédents sont issus de modèles. Expérimentalement, il n'y a pour l'instant aucune preuve de l'existence d'une PPT.

9.2.3.1 Modèle chimique

Les deux principaux modèles chimiques qui existent sont le modèle SESAME et le modèle de Ross. La difficulté principale de la construction du modèle chimique à haute pression est le manque d'information sur la structure chimique du mélange dissocié. On ne sait pas si le mélange est un mélange d'atomes

et de molécules comme dans un gaz dissocié ou si les liaisons chimiques entre espèces présentes sont plus complexes.

Le modèle de Ross [129, 112] est basé sur l'idée d'un mélange linéaire entre un fluide moléculaire et un fluide métallique. L'énergie libre de Helmholtz s'écrit alors :

$$F = (1-x)F_{mol} + xF_{met} - TS_{mix} \tag{9.9}$$

où F_{mol} est l'énergie libre d'un fluide moléculaire et F_{met}, l'énergie libre d'un fluide métallique. x est la fraction de molécules dissociées et est déterminée en minimisant F. S_{mix} est l'entropie du mélange de H_2 et H. Ce terme est généralement petit et sera négligé par la suite. Il ne faut pas comprendre que ce modèle suppose que le mélange est un mélange uniquement moléculaire et métallique, mais plutôt que l'énergie libre peut s'exprimer comme une moyenne entre ces deux états.

F_{mol} est calculé en utilisant la théorie variationnelle des fluides avec des sphères molles [129, 130].

$$F_{mol} = F^0_{mol} + F_{ref} + F_{int} \tag{9.10}$$

Le premier terme correspond à un gaz idéal de particules et inclut les énergies de translation, de rotation, de vibrations et de dissociation. F_{ref} est l'énergie libre d'un système de sphères molles et F_{int} est la contribution des interactions moléculaires calculées avec le potentiel Ross-Ree-Young [129].

F_{met} se met sous la forme [112] :

$$F_{met} = F^0_{trans} + E_{bcc} + F_{thOCP} + F_1 \tag{9.11}$$

F^0_{trans} est l'énergie libre de translation H-ion. E_{bcc} est l'énergie d'arrangement bcc de l'hydrogène métallique. F_{thOCP} est l'énergie thermique d'un plasma à une composante (OCP). F_1 est la correction au premier ordre de l'énergie libre dûe à l'écrantage électron-ion. L'expression de chaque terme peut être trouvé dans l'article de Ross [112] et dans les références qu'il donne.

9.2.3.2 Possible existence d'une transition de phase plasma

Le modèle de Ross fait une interpolation linéaire entre un modèle purement moléculaire et un modèle totalement ionisé et monoatomique. Ainsi par construction, il prédit une transition de phase continue entre un état moléculaire et un état plasma.

Le modèle de Saumon-Chabrier [131, 132, 115, 133] est aussi un modèle chimique, mais le passage entre les deux états limites est traité de manière différente. Le système est constitué d'un mélange de H_2, H, H^+ et e^-. Ce modèle est caractérisé par l'introduction d'un potentiel de polarisation F_{pol} destiné à prendre en compte l'interaction entre les particules chargées et les particules neutres du système. L'expression de F_{pol} est donnée dans [115]. La composition du mélange est ensuite trouvée de manière classique en minimisant l'énergie libre totale. Une des prédictions importantes de ce modèle est l'apparition d'une transition de phase plasma PPT. La figure 9.6 présente une isotherme calculée dans la région PPT. La discontinuité de la pression est le résultat d'un changement soudain du degré d'ionisation vers une valeur plus élevée. C'est une indication forte d'une transition du premier ordre.

Saumon et Chabrier n'excluent pas le fait que cette transition peut être seulement un artifice dû au modèle lui même. Cela souligne l'importance d'obtenir des données expérimentales dans ce domaine.

9.2.3.3 Comportement de l'Hugoniot

Comme nous l'avons vu précédemment en introduction, la situation tant sur le point expérimental que théorique est assez confuse. La figure 9.7 montre les théories qui limitent l'Hugoniot de D_2. La

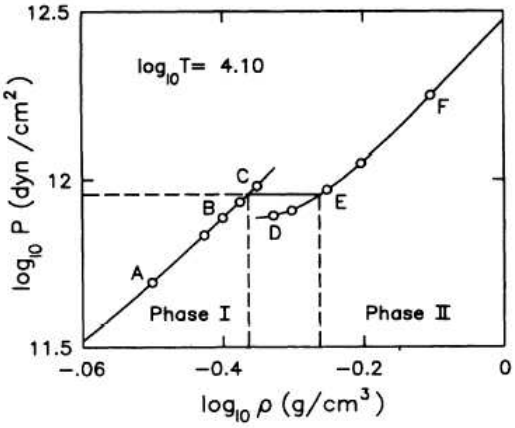


FIG. 9.6 – Isotherme dans la région de transition de phase plasma PPT [115]. La température est de $10^{4.1}$. Les cercles ouverts sont les points calculés numériquement avec le modèle. Les concentrations d'équilibre des particules chargées sont ($x_{H^+} + x_e = 2x_{H^+}$) : A, 0.0072 ; B, 0.015 ; C, 0.023 ; D, 0.373 ; E, 0.517 ; F, 0.625.

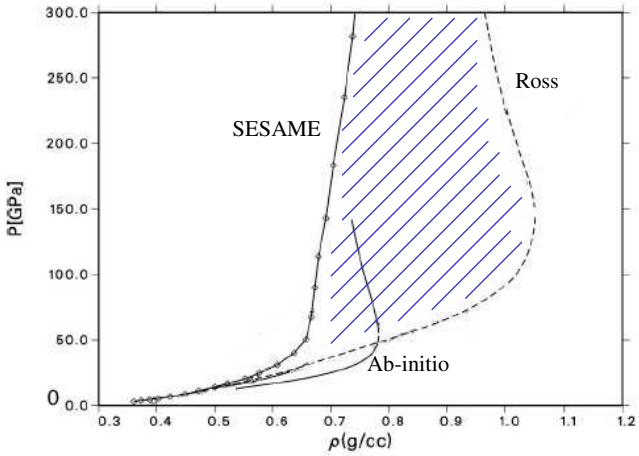


FIG. 9.7 – Hugoniot théorique du deutérium [134] : courbe pointillé, Roos (chimique) ; courbe solide, Lenosky (ab-initio) ; courbe solide+points, SESAME

courbe en pointillés est l'Hugoniot de Ross. L'Hugoniot de Saumon Chabrier est pratiquement identique. La courbe solide avec les points est l'Hugoniot de SESAME développée par Kerley. Ces deux courbes encadrent l'ensemble des théories qui ont été développées (zone hachurée).La courbe solide est une courbe obtenue par méthode ab-initio [134].

9.3 Résultats

9.3.1 Objectifs des mesures

L'hydrogène avec un seul électron et un seul proton est un système de référence pour la physique des hautes densités. L'étude de l'équation d'état avec les lasers de quelques KJ permet d'atteindre un domaine encore jamais atteint auparavant et devrait permettre d'apporter des réponses sur le diagramme de phase et en particulier sur l'existence ou non d'une PPT. La figure 9.8 présente l'ensemble des états

atteints par des chocs sur cibles précomprimées actuellement, c'est à dire pour des précompressions jusqu'à 1.5 GPa. Avec une pré-compression de 5 GPa (prévue pour les expériences sur la LIL), on devrait pouvoir couvrir vraiment le domaine de la PPT.

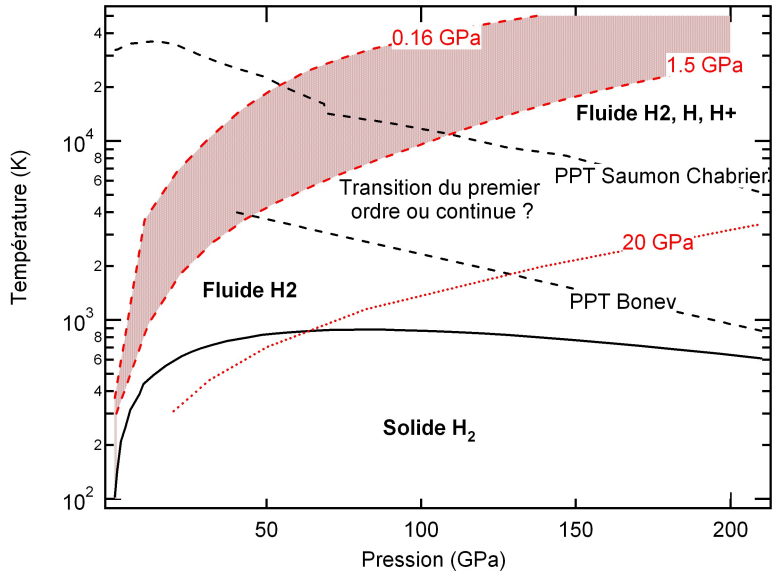


FIG. 9.8 – Domaine exploré avec des chocs sur cibles précomprimées. La courbe rouge supérieure et la courbe rouge inférieure représente les Hugoniots SESAME de l'hydrogène pour une précompression de 0.16 GPa et 1.5 GPa. La zone rouge montre ainsi l'ensemble des états que l'on peut atteindre, actuellement, avec des chocs sur cibles précomprimées. La courbe rouge montre la courbe d'Hugoniot pour une précompression de 20 GPa.

9.3.2 EOS H2 et D2

L'hydrogène a été étudié pour plusieurs précompressions : 0.16 GPa, 0.3 GPa, 0.7 GPa et 1.5 GPa. Toutes les mesures ont été réalisés à Rochester sur le laser Omega. Le quartz a été utilisé comme matériau de référence pour toutes les mesures et le modèle de Grüneisen présenté précédemment a été appliqué pour déterminer l'isentrope de détente.

3 tirs ont été réalisés sur le deutérium avec une précompression initiale de 0.3 GPa. Cette précompression a été choisie de manière à partir de la même densité initiale que celle des mesures cryogéniques, pour pouvoir ainsi réaliser une comparaison directe avec les résultats existants. En octobre 2006, 3 nouveaux tirs ont été réalisés à des précompressions différentes pour faire une comparaison avec l'hydrogène. Ces 3 derniers points sont en cours d'analyse. Les tableaux 9.1 et 9.2 rassemblent l'ensemble des points obtenus sur l'hydrogène et le deutérium.

Les figures 9.9 et 9.10 présentent les résultats obtenus pour l'hydrogène dans les plans P-ρ et T-P. La précompression a un double rôle. Elle permet d'une part d'atteindre une densité maximum plus grande. La densité à une pression de 64 GPa par exemple est de 0.58 g/cm^3 pour une pression initiale de 1.5 GPa alors qu'elle n'est que de 0.49 g/cm^3 pour une pression initiale de 0.16 GPa. D'autre part, les températures atteintes sont beaucoup moins élevées lorsque la précompression initiale est plus importante. Précomprimer l'échantillon permet ainsi d'atteindre des états plus denses et moins chauds que lors d'expériences de chocs classiques sur cibles cryogéniques.

P_0 (GPa)	ρ_0	$U_{S_{qz}}(km/s)$	$U_{S_{h2}}(km/s)$	$U_{p_{h2}}(km/s)$	P (GPa)	ρ/ρ_0	R	T (eV)
0.13	0.0566	24.1(5)	35.1(6)	29.8(13)	59(6)	6.6(16)	36(5)	2.14(44)
0.16	0.0641	20.7(5)	28.6(5)	24.2(12)	45(4)	6.6(18)	26(9)	1.06(20)
0.16	0.0641	16.3(3)	21.6(10)	17.6(7/8)	25(2)	5.5(10)	3(1)	0.46(10)
0.22	0.0756	15.5(11)	20.6(5)	16.1(25)	25(4)	4.6(24)	10(6)	0.53(7)
0.3	0.0871	26.3(3)	38.4(3)	31.4(7)	105(4)	5.5(6)	38(15)	2.37(74)
0.31	0.0883	20.5(3)	28.6(4)	22.9(7)	58(3)	5.0(6/7)	40(13)	0.98(0.38)
0.33	0.0907	21.2(3)	29.4(3)	23.9(7)	64(3)	5.3(7)	44(11)	1.24(48)
0.68	0.1205	21.5(4)	30.1(4)	23.3(9)	85(4)	4.4(6)	38(6)	1.13(19)
0.7	0.1218	17.5(3)	23.3(5)	17.8(7)	51(2)	4.2(5)	24(8)	0.57(8)
0.74	0.1243	16.6(4)	22.1(3)	16.5(8)	46(2/3)	3.9(6)	15(5)	0.51(7)
1.37	0.1539	21.6(3)	31.1(3)	22.4(7)	109(3/4)	3.6(3)	51(35)	1.26(70)
1.44	0.1564	16.7(7)	23.1(4)	15.9(15)	59(6)	3.2(7)	13(5)	0.48(13)
1.48	0.1579	17.5(6)	23.3(5)	17.0(13)	64(5)	3.7(8)	23(5)	0.50(13)
0.16	0.0641	20.1(10)	28.0(8)	23.4(24)	42(5)	6.0(28)		

TAB. 9.1 – Ensemble des points obtenus sur l'hydrogène. Les nombres indiqués entre parenthèses sont l'erreur sur le dernier chiffre du résultat. L'erreur sur la pression initiale est de 0.2 kbar. Elle entraîne ainsi une erreur sur la densité initiale. Cette erreur n'est pas indiquée dans le tableau, mais elle a été prise en compte dans l'évaluation de l'ensemble des barres d'erreur.

P_0 (GPa)	ρ_0	$U_{S_{qz}}(km/s)$	$U_{S_{h2}}(km/s)$	$U_{p_{h2}}(km/s)$	P (GPa)	ρ/ρ_0	R	T (eV)
0.28	0.169	21.9(3)	30.1(3)	22.8(7)	116(5)	4.1(4)	29(5)	2.29(97)
0.3	0.1742	20.9(3)	27.3(3)	21.5(7)	103(4)	4.7(5)	22(7)	1.56(57)
0.27	0.1663	18.6(3)	23.8(3)	18.6(6/7)	74(3)	4.6(6)	45(6)	1.48(60)
0.16	0.128	21.2(3)	26.9(3)	23.1(8)	78(5/6)	7.0(14)		
0.15	0.124	21.9(3)	28.4(3)	24.1(8)	85(6)	6.4(12)		
1.4	0.31	13.5(6)	15.4(5)	11(1)	54(6)	3.5(9/10)		

TAB. 9.2 – Ensemble des points obtenus sur le deutérium. Les nombres indiqués entre parenthèses sont l'erreur sur le dernier chiffre du résultat. L'erreur sur la pression initiale est de 0.2 kbar. Elle entraîne ainsi une erreur sur la densité initiale. Cette erreur n'est pas indiquée dans le tableau, mais elle a été prise en compte dans l'évaluation de l'ensemble des barres d'erreur.

Remarque sur les barres d'erreur Les barres d'erreur sont beaucoup plus grandes pour les pressions initiales faibles (points rouges) que pour les pressions initiales élevées (point violets). Deux principales raisons sont à l'origine de cette différence. La première est liée à la sensibilité de la densité avec la pression initiale. 0.2 kbar d'erreur pour une pression initiale de 0.13 GPa représente une erreur de 15% sur la pression soit une erreur de 11% environ sur la densité initiale. Cette erreur non négligeable se propage ensuite entraînant de grandes barres d'erreur sur la densité finale. Pour une pression initiale de 1.5 GPa, l'erreur sur la pression n'est que de 1.3% et est inférieure à 1% sur la densité. La seconde raison est toujours reliée à la densité initiale, mais elle se manifeste dans la méthode de désadaptation d'impédance. Lorsque la densité initiale de l'échantillon est plus importante, la droite $\rho_0 U_s$ croise l'isentrope de détente dans une zone plus verticale. Bien que cela augmente légèrement l'erreur sur la pression finale, cela réduit principalement l'erreur sur la vitesse particule U_p responsable ensuite de l'erreur sur la densité : $\frac{\rho}{\rho_0} = \frac{U_s}{U_s - U_p}$. On observe ainsi des erreurs plus petites en densité pour des pressions initiales plus grandes.

La figure 9.11 représente l'Hugoniot du deutérium dans le plan P-$\frac{\rho}{\rho_0}$. Nos points expérimentaux se situent au milieu des points obtenus par z-pinch et des nouveaux points laser-Al. Nous retrouvons un maximum de compression de 5 avec une méthode encore différente par rapport aux résultats précédents. En plus des résultats déjà obtenus avec l'hélium, ces résultats sont une nouvelle validation de notre mé-

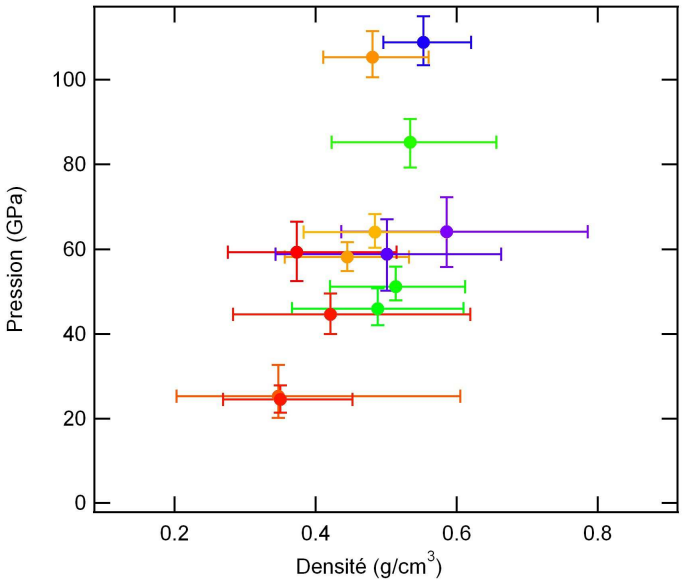


FIG. 9.9 – Points H_2 obtenus dans le plan P-ρ. La couleur correspond à la pression initiale : 1.5 GPa (bleu), 0.7 GPa (vert), 0.3 GPa (orange) et 0.16 GPa (rouge).

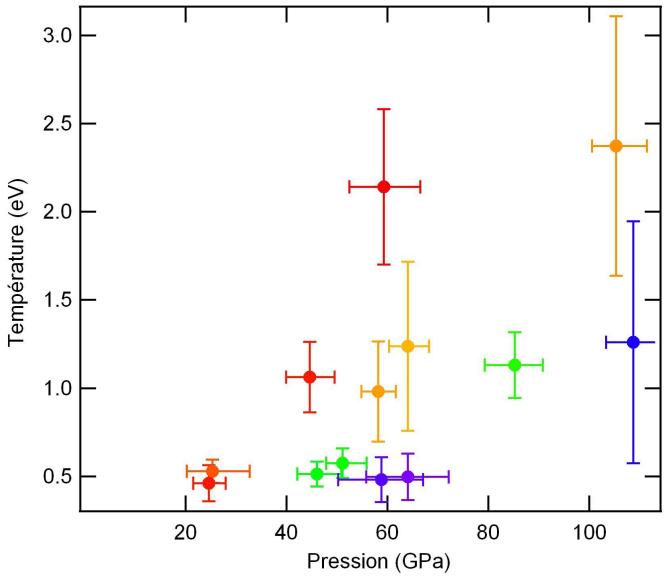


FIG. 9.10 – Points H_2 obtenus dans le plan P-T. La couleur correspond à la pression initiale : 1.5 GPa (bleu), 0.7 GPa (vert), 0.3 GPa (orange) et 0.16 GPa (rouge).

trologie, basée sur le quartz comme référence.

Différence entre Hugoniot symétrique et modèle de Grüneisen : problème de l'équation d'état du quartz Il est apparu dans les mesures sur l'hélium ou sur le diamant que utiliser le modèle de Grüneisen ou l'Hugoniot symétrique pour le modèle du quartz ne modifiait pas de manière significative les résultats obtenus. L'intersection entre la droite de pente $U_s\rho_0$ et l'isentrope de détente se situait au

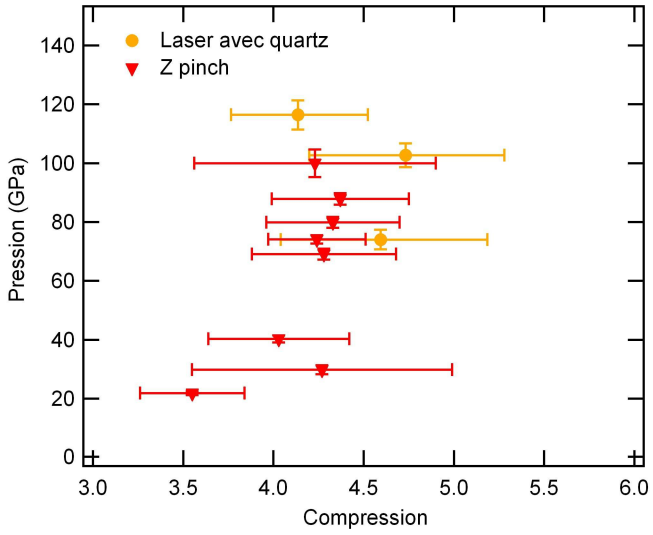


FIG. 9.11 – Hugoniot du deutérium dans le plan P-$\frac{\rho}{\rho_0}$. Nos points expérimentaux sont les ronds oranges. Les triangles rouges sont les mesures par z-pinch de Knudson corrigées par Celliers [135].

dessus ou au niveau du point d'intersection entre l'Hugoniot symétrique et l'isentrope de détente. Pour l'hydrogène, la situation est différente.

La figure 9.12 présente les points obtenus en utilisant soit l'Hugoniot symétrique, soit l'isentrope de détente obtenue par le modèle de Grüneisen. Pour les faibles précompressions (points rouges), on obtient sur le plan P-$\frac{\rho}{\rho_0}$ soit une compression maximale de 5 (Hugoniot symétrique) soit une compression maximale de 7 (modèle de Grüneisen). Des modèles reproduisent chacune des compressions maximales possibles. Le modèle de Ross reproduit une compression de 7 alors que le modèle de SESAME est plus proche d'une compression de 5. Pour des précompressions plus élevées (points bleus), utiliser l'hugoniot symétrique ou le modèle de Gruneisen ne change rien. Le modèle du quartz apparaît dans cette situation critique. En effet pour les faibles précompressions, l'intersection entre la droite $\rho_0 U_s$ et l'isentrope de détente se situe dans une zone où la différence entre l'Hugoniot symétrique et l'isentrope de détente est importante. Les résultats sont donc particulièrement sensibles au modèle utilisé. Pour discriminer les deux situations, il apparaît très important de réaliser des mesures de détente du quartz pour mieux contraindre le modèle utilisé. Les points obtenus pour des pressions initiales plus grandes sont moins sensibles au modèle d'équation d'état du quartz car l'intersection entre les deux courbes se situent dans une zone où la différence entre l'Hugoniot symétrique et l'isentrope est plus faible.

9.3.3 Effet de la précompression

Les figures 9.13 et 9.14 présentent dans les plans P-$\frac{\rho}{\rho_0}$ et T-P les points obtenus expérimentalement et les courbes théoriques de Ross et de SESAME. Aucune théorie n'apparaît entièrement satisfaisante. Le modèle de Ross reproduit les résultats à basse pression alors que le modèle SESAME est valide à hautes pressions. De la même manière que pour l'hélium, le maximum de compression dépend de la densité initiale.

9.3.4 Métallisation

De la même manière que pour l'hélium, la réflectivité a été déterminée pour chaque point. La figure 9.15 présente la réflectivité en fonction de la température. On constate que la réflectivité augmente

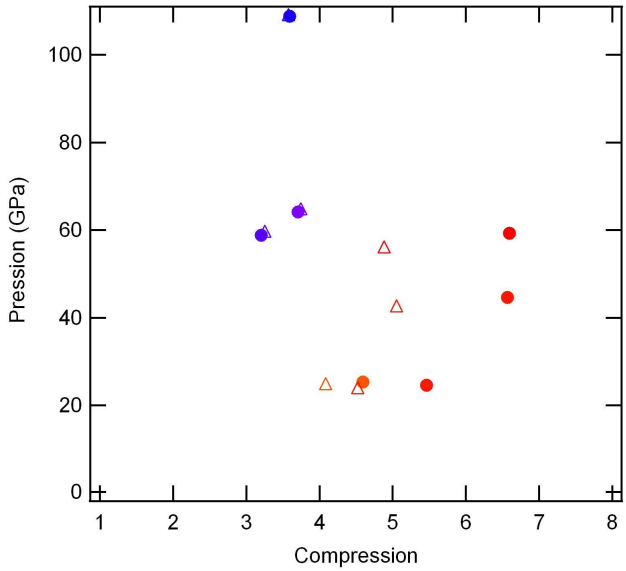


FIG. 9.12 – Influence du modèle du quartz sur les résultats. Les ronds ont été obtenus à partir du modèle de Gruneisen et les triangles à partir de l'hugoniot symétrique. Les points rouges et bleus correspondent respectivement à une pression initiale de 0.16 GPa et 1.5 GPa.

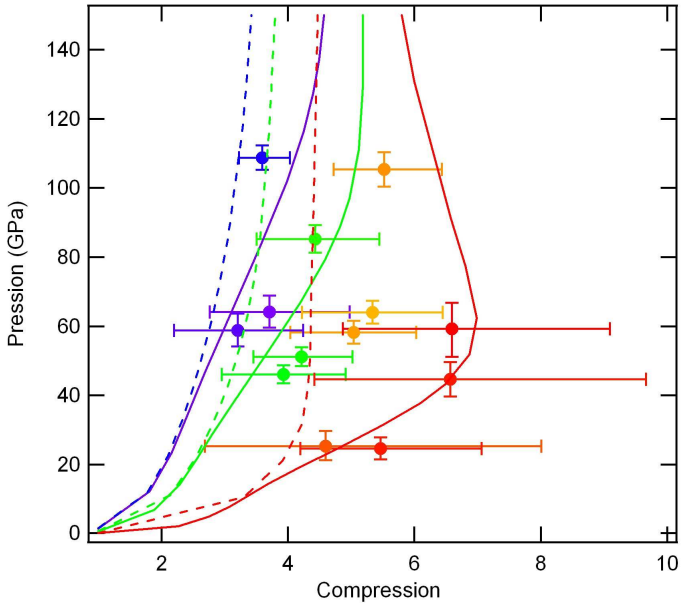


FIG. 9.13 – Hugoniots de H2 dans le plan Pression-$\frac{\rho}{\rho_0}$ et P-T. Les courbes rouges, vertes et bleues sont les Hugoniots pour des précompressions de 0.16, 0.7 et 1.5 GPa avec l'équation d'état de Ross (courbe solide) et l'équation d'état SESAME (courbe pointillés). Les ronds ont été obtenus avec le modèle de Gruneisen pour le quartz. Les points oranges correspondent à une précompression de 0.3 GPa.

rapidement avec la température à partir de 6000 K environ. L'augmentation est d'autant plus rapide que la précompression est importante. La réflectivité semble saturer ensuite autour de 40%.

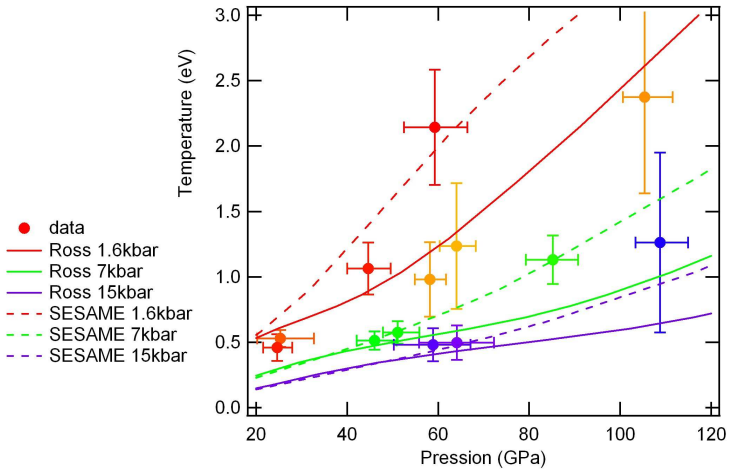


FIG. 9.14 – Hugoniots de H2 dans le plan Température-Pression. Les courbes rouges, vertes et bleues sont les Hugoniots pour des précompressions de 0.16, 0.7 et 1.5 GPa avec l'équation d'état de Ross (courbe solide) et l'équation d'état SESAME (courbe pointillés). Les ronds ont été obtenus le modèle de Grüneisen pour le quartz.

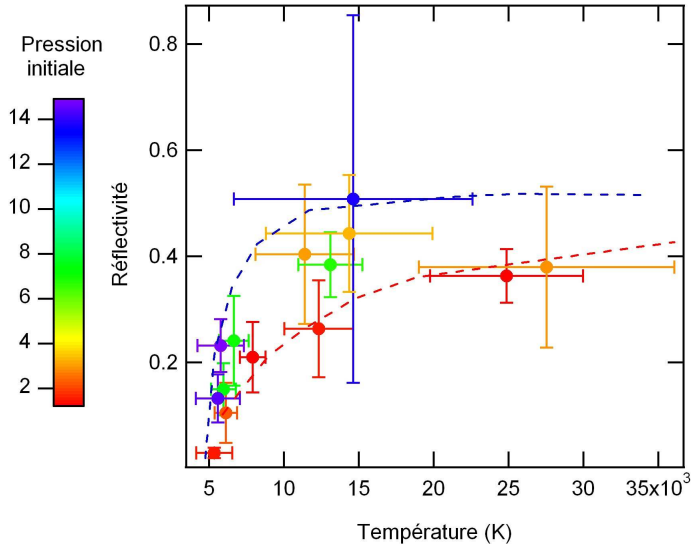


FIG. 9.15 – Réflectivité en fonction de la température. L'échelle de couleur correspond à la pression initiale. Les pointillés sont des guides pour les yeux.

Une des questions posées sur le diagramme de phase était l'existence ou non d'une transition de phase entre un état isolant et un état conducteur du premier ordre. La figure 9.16 présente le diagramme de phase de l'hydrogène.

La réflectivité peut être reliée par un simple modèle de Drude à l'ionisation des molécules. Plus la réflectivité est grande, plus l'ionisation est importante. Si la transition entre un état moléculaire et un état métallique était du premier ordre, on observerait un saut de réflectivité. Ce saut "attendu" n'est pas présent dans la zone couverte par les points expérimentaux. La réflectivité augmente de manière régulière laissant supposer que le passage entre l'état moléculaire et métallique est continue. Cependant ces observations ne remettent pas en cause la possible existence d'une transition du premier ordre dans une zone plus froide et plus dense. Cela est suggéré par l'écart entre les deux droites rouges (zone de

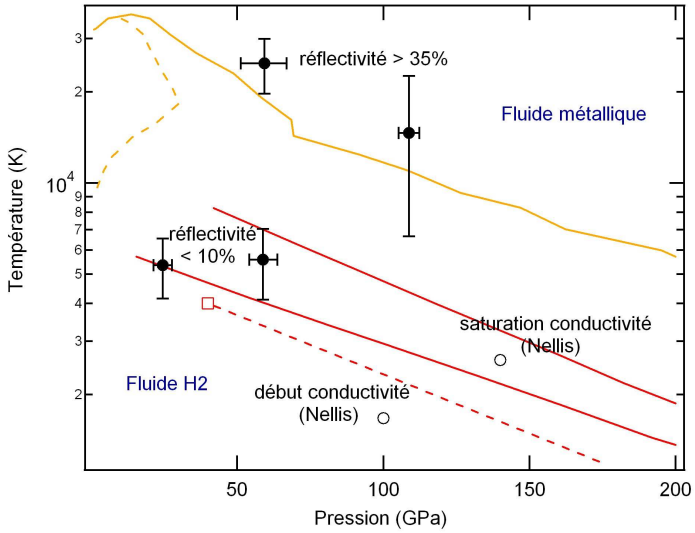


FIG. 9.16 – Diagramme de phase de l'hydrogène en T-P. Les points noirs sont nos données. Les deux points supérieurs correspondent à une réflectivité supérieure à 35% et à une pression initiale de 0.16 GPa (point à gauche) et 1.5 GPa (point à droite). Les deux points inférieurs ont une réflectivité inférieure à 10%. La pression initiale est à nouveau 0.16 (point à gauche) et 1.5 GPa (point à droite). Les deux ronds vides sont les points de Nellis et correspondent au début de conductivité et à la saturation. Il faut se rapporter à la figure 9.1 pour la description des différentes équations d'état représentées (courbe orange et rouge).

mélange entre l'état moléculaire et métallique) qui se réduit lorsque la pression augmente.

Estimation du gap A partir des mesures de réflectivité et d'un simple modèle de Drude, la conductivité a été estimée en fonction de la température et de la pression (figure 9.17).

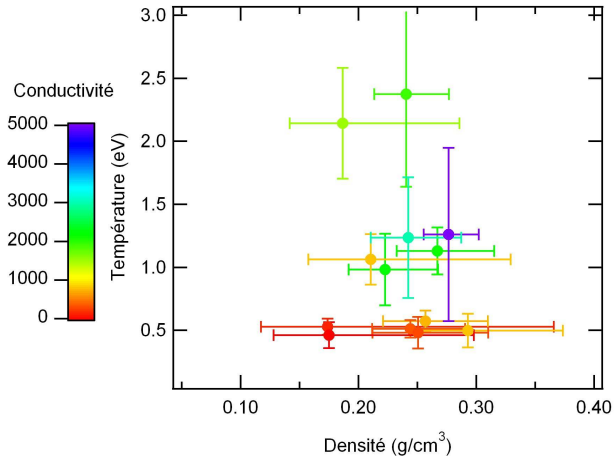


FIG. 9.17 – Conductivité en fonction de la température et de la densité

En prenant en compte les barres d'erreur, on observe qu'à une densité donnée, la conductivité augmente avec la température. A partir de ces données, le gap E_g a été déterminé pour différentes densités.

En prenant le même modèle que Nellis, on a :

$$\sigma = \sigma_0 e^{-E_g(\rho)/2k_BT} \tag{9.12}$$

En prenant des couples de points à la même densité (ou presque) ρ_1 mais à des températures différentes, on peut déterminer E_g à une densité donnée :

$$\sigma_1 = \sigma_0 e^{-E_g(\rho_1)/2k_BT_1} \tag{9.13}$$

$$\sigma_2 = \sigma_0 e^{-E_g(\rho_1)/2k_BT_2} \tag{9.14}$$

ce qui donne en faisant le rapport entre σ_1 et σ_2 :

$$E_g(\rho_1) = ln\left(\frac{\sigma_1}{\sigma_2}\right)\frac{-2kT_1T_2}{T_2 - T_1} \tag{9.15}$$

Les couples de points ont été choisis de manière à ce qu'ils aient la même densité ou presque, des températures suffisamment différentes et qu'ils ne soient pas dans un régime saturé. Les résultats obtenus sont présentés figure 9.18. Le domaine couvert est un peu différent des précédents résultats de Nellis et se situe entre la zone des chocs multiples et le choc simple. Nos points sont en bon accord avec une interpolation entre les deux zones (courbe noire pointillée) et confirment une fermeture du gap pour une densité légèrement supérieure à 0.3 mol/cm^3.

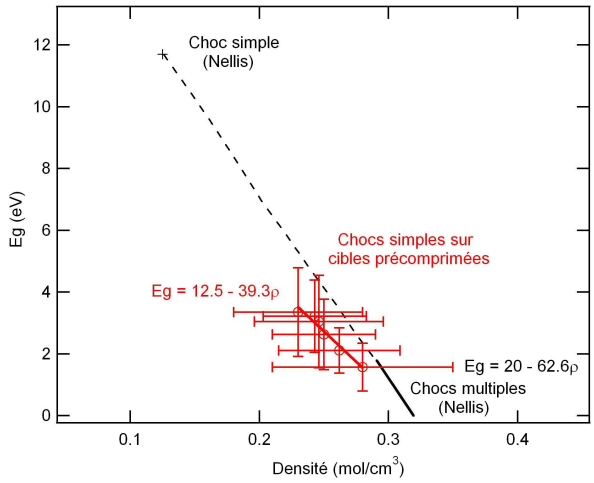


FIG. 9.18 – Evolution du gap électronique en fonction de la densité. Les barres d'erreur sur le gap ont été déterminées à partir des erreurs sur la température et les barres d'erreur sur la densité à partir des barres d'erreur sur la densité de chaque couple de points. La densité indiquée est une moyenne entre les deux points. Les résultats de Nellis sont également présentés [126, 118].

9.4 Conséquences astrophysiques

On peut identifier deux phénomènes principaux pouvant jouer un rôle important en astrophysique : la présence ou l'absence d'une PPT et la position du maximum de compression de l'hydrogène.

Le rôle de la transition moléculaire-métallique de l'hydrogène sur l'évolution de Jupiter et Saturne a été étudié par Saumon et Chabrier [136, 115]. Une des principales caractéristiques de cette transition

est l'apparition d'une discontinuité d'entropie qui affecte la structure thermique des deux planètes. Pour des conditions de surface données, les enveloppes internes de la planète sont plus chaudes lorsque la transition de phase est présente. Malgré cette différence entre les adiabatiques, il apparaît que la PPT joue un rôle mineur sur l'évolution des planètes géantes. Lorsque les modèles sont optimisés pour reproduire les contraintes gravitationnelles, la présence ou l'absence de la PPT ne change l'âge estimé des planètes que de 1 à 2%.

En revanche la position du maximum de compression joue un rôle majeur sur l'évolution de Jupiter et ainsi de toutes les planètes de même type. Ce problème a été abordé par Hubbard [137]. Deux principales hypothèses existent concernant la formation de Jupiter et Saturne. Dans la première hypothèse, les planètes se seraient formées par un effondrement gravitationnel spontanée de l'hydrogène et de l'hélium. Cette solution paraît peu probable car les températures ne sont pas suffisamment basses pour permettre la condensation ni de l'hélium, ni de l'hydrogène. Il paraît plus probable (deuxième hypothèse) que la formation de Jupiter et Saturne ait été initié par l'effondrement du gaz dans un puits gravitationnel créé par un solide dense qui constituerait alors le coeur de la planète. La taille de coeur minimum pour entraîner cette accretion serait de environ 15 masses terrestres. Pour Saturne, l'existence d'un coeur apparaît clair et il y a peu de doute quant à sa masse [89]. Par contre, pour Jupiter, la situation est critique. Si le maximum de compression le long de l'Hugoniot de l'hydrogène est important (données laser), Saumon et Guillot [89] trouvent des modèles avec des tailles de coeur suffisantes. Par contre, si ce maximum est plus faible comme suggéré par les données Z-pinch, le coeur de Jupiter ne dépasserait pas 5 masses terrestres et pourrait même être nul. Malheureusement, tant que le modèle du quartz n'est pas mieux contraint, il est difficile de se prononcer quant à la position de ce maximum.

9.5 Conclusion

Nos résultats sur le **deutérium**, obtenus avec le quartz comme référence, sont en accord avec les résultats Z-pinch, obtenus avec l'aluminium comme référence. Cela nous permet de valider la métrologie du quartz.

Le **maximum de compression** de l'hydrogène dépend, comme pour l'hélium, de la précompression initiale. Il **diminue lorsque la pression initiale augmente**. Cependant la position de ce maximum n'est pas claire. En effet, selon le modèle de quartz utilisé (Hugoniot symétrique ou modèle de Gruneisen), le maximum varie entre 5 et 6.4 pour une précompression de 1.6 kbar. Cela met en évidence le problème d'une **incertitude sur l'équation d'état du quartz**. Il est nécessaire d'acquérir des données expérimentales sur la détente pour mieux contraindre celle-ci.

L'étude sur la réflectivité est riche d'informations. Dans un premier temps, le **passage entre un état non conducteur et conducteur** se fait de **manière continue**. Une transition de phase du premier ordre n'a donc pas été mise en évidence dans le domaine P-T étudié. Dans un second temps, ces données ont été utilisées pour **déterminer Eg(ρ)** dans un nouveau domaine. Bien que les barres d'erreur soient encore importantes, les résultats sont en bon accord avec une interpolation entre les mesures de Nellis (chocs simples et multiples).

Chapitre 10

Hydrogène/Hélium

Sommaire

10.1 Problématique astrophysique **171**
10.2 Etude des mélanges H2/He : problème de miscibilité **171**
10.3 Conséquences sur Jupiter et Saturne **173**
10.4 Premiers résultats **175**
10.4.1 Comment détecter la miscibilité ? 175
10.4.2 Mesures 175
10.5 Conclusion **177**

10.1 Problématique astrophysique

Les intérieurs de Jupiter et Saturne, des planètes géantes extrasolaires et des naines blanches peuvent être décrits par la même physique. Ils sont constitués majoritairement d'hydrogène et d'hélium fluides conducteurs et le transport d'énergie interne est principalement convectif entraînant ainsi des intérieurs isentropes. La figure 10.1 présente une représentation schématique des intérieurs de Jupiter et de Saturne. [4]. Connaissant leur masse, leur luminosité et leur âge précisément, ces deux planètes constituent un test pour les différents modèles physiques et peuvent servir de calibration pour l'ensemble des planètes gazeuses. Cependant, la compréhension de leur évolution n'est pas encore parfaite. L'écart le plus important entre la théorie et la réalité est dans le calcul de la luminosité de Saturne. Sa luminosité est à peu près 50% supérieure aux prédictions des modèles d'évolution homogène. Saturne émet plus de lumière qu'elle n'en reçoit du soleil laissant supposer l'existence d'une source interne de chaleur. Une explication possible serait la séparation de phase de l'hélium et de l'hydrogène. Cette différentiation entraînerait une libération d'énergie gravitationnelle qui serait convertie en chaleur et donc en radiation augmentant ainsi la luminosité de la planète.

10.2 Etude des mélanges H2/He : problème de miscibilité

Le problème de miscibilité de l'hélium dans l'hydrogène soulevé par les observations planétaires et suggéré par Smoluchowski en 1963 fut étudié par de nombreux théoriciens [138, 139, 140, 141, 142, 143]. Le premier modèle développé fut le modèle chimique de Stevenson [138] basé sur la détermination

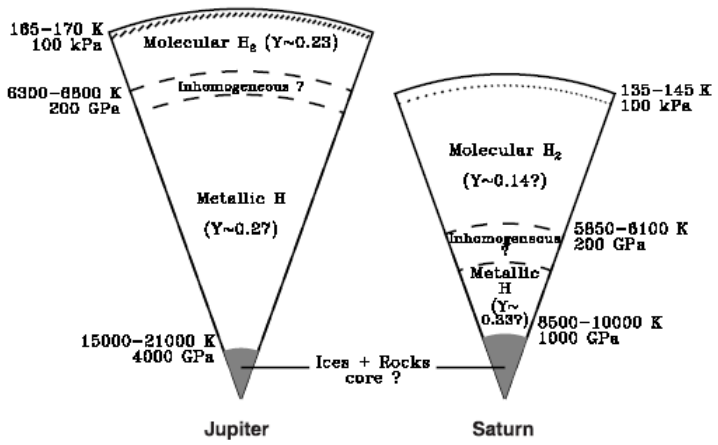


FIG. 10.1 – Représentation schématique de l'intérieur de Jupiter et Saturne. Y est la fraction massique d'hélium tel que $\frac{Y}{Y+X} = 0.23$ avec X, la fraction massique d'hydrogène.

de l'énergie libre du système et sa minimisation. On peut alors déterminer la séparation des phases (si elle a lieu) en calculant l'énergie de Gibbs G(P, T, x) du système et en déterminant si $\frac{\partial^2 G}{\partial x^2} < 0$ dans certaines régions de l'espace, x étant la fraction d'hélium. Ces régions instables sont favorables à la séparation des phases. Pour une composition de x=0.1 correspondant à la composition chimique du soleil, il existe une séparation en une phase riche en hydrogène et une phase riche en hélium pour des températures inférieures à 8000 K dans une gamme de pression allant de 4 à 200 Mbar. Stevenson et Salpeter [142] complétèrent par la suite ce modèle et étudièrent les conséquences sur la formation de Jupiter et Saturne [144].

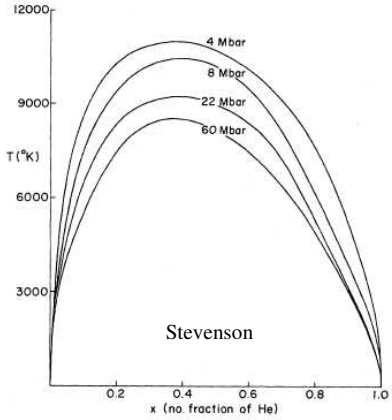
Schouten et al. [140] ont étudié ces mélanges par des méthodes de Monte Carlo. Le domaine étudié couvre des pressions allant jusqu'à 700 kbar et des températures allant jusqu'à 2500K. Ce modèle ne couvre pas le domaine des planètes, mais par extrapolation, à 2Mbar, il prédit une transition de phase pour un mélange avec 10% d'hélium vers de l'hydrogène solide moléculaire à des températures inférieures à 6000K. Les modèles précédents prévoyaient des températures entre 8000 et 10000K.

Le modèle ab-initio de Pfaffenzeller et al [139] prédit une région d'immiscibilité avec une forme très différente des modèles de Stevenson [138] et Hubbard et Dewitt [145] (modèle Monte Carlo donnant des résultats très proches de ceux de Stevenson). La concentration de saturation de l'hélium dans l'hydrogène métallique diminue lorsque la pression augmente alors que le comportement inverse était prédit par les précédents modèles [138] et [145]. La figure 10.2 présente un récapitulatif des différents modèles.

Les calculs les plus récents sont les calculs de simulations Monte Carlo quantique de Militzer [143] et couvrent un domaine de température beaucoup plus chaud supérieur à 15000K. Il s'est en particulier intéressé aux variations des fonctions de corrélation en fonction de la concentration d'hélium. Il est apparu que pour les interactions protons/protons, l'augmentation de la concentration d'hélium entraîne l'apparition d'un pic à r=1.4a_0 indicant la formation de molécules de H_2. Cette formation de molécules d'hydrogène à ces pressions et températures n'est pas prévue dans les modèles d'hydrogène pur, qui sont utilisés pour calculer les modèles de mélanges H_2/He.

Ainsi, en plus des incertitudes déjà évoquées sur les modèles purs d'hélium et d'hydrogène, il apparaît également de grandes incertitudes sur les modèles de mélanges : température de démixion, évolution

Stevenson	**Schouten**	**Pfaffenzeller**
Modèle chimique	Modèle Monte Carlo	Modèle ab-initio
Séparation en une phase riche en H2 et une riche en He pour: T<8000 K 4 Mb < P < 200 Mb	Modèle valable jusqu'à 700kbar. Extrapolation donne une séparation pour: T < 6000K P=2Mb	Séparation pour: T < 5000K P=4Mb
Evolution de la concentration de saturation: Augmentation lorsque P augmente	Même évolution que Stevenson	Evolution de la concentration de saturation: Augmentation lorsque P diminue



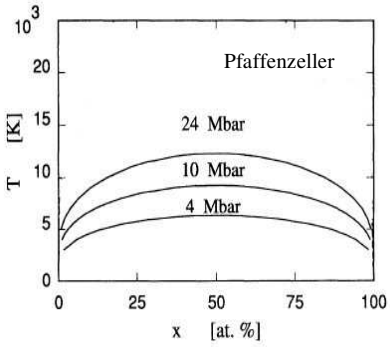


FIG. 10.2 – Récapitulatif des modèles pour He/H_2

avec la pression, fonction de corrélation,... Il n'existe pas pour le moment de données expérimentales sur ces mélanges pouvant permettre de discriminer les théories entre elles.

10.3 Conséquences sur Jupiter et Saturne

Deux principales théories ressortent : une approche où la concentration de saturation d'hélium dans le liquide métallique d'hydrogène augmente avec la pression (théories de Stevenson et al. et Hubbard et al.) et une approche où la concentration de saturation d'hélium diminue lorsque la pression augmente (Pfaffenzeller). La figure 10.3 présente le diagramme de phase de l'hydrogène avec les zones d'immiscibilité données par les différentes approches. La zone déterminée par la théorie de Pfaffenzeller ne croise pas les courbes de Jupiter et Saturne impliquant ainsi qu'il n'y a pas de séparation de phase dans ces deux planètes. Cette théorie n'apparaît pas satisfaisante car une évolution homogène donne une estimation erronée de l'âge de la planète comme illustrée sur la figure 10.4. Les théories de Hubbard et Dewitt et Stevenson prévoient une zone d'immiscibilité (zone hachurée horizontalement) qui croise bien l'intérieur de Jupiter et Saturne. Cependant l'âge estimé de Saturne n'est pas encore correct bien que cette estimation soit déjà plus proche que la théorie de Pfaffenzeller. Fortney et Hubbard [146] ont essayé de modifier le modèle de Pfaffenzeller pour obtenir une zone d'immiscibilité compatibles avec les inté-

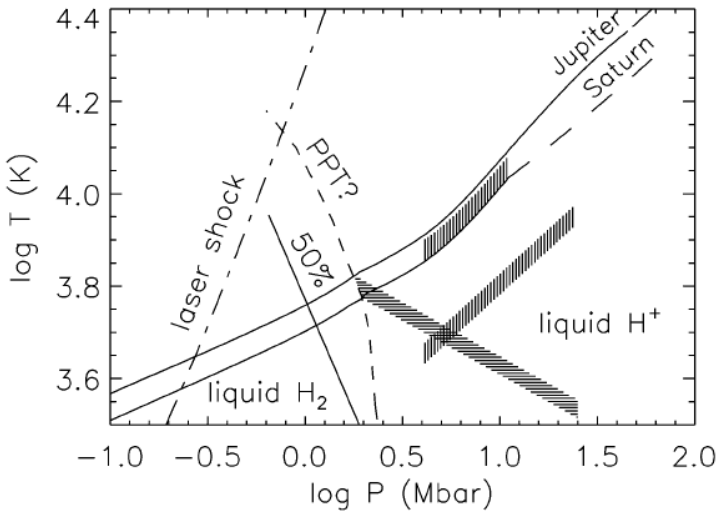


FIG. 10.3 – Diagramme de phase de H_2 et zone d'immiscibilité [146]. Les deux courbes solides représentent l'intérieur de Jupiter et Saturne à t=4.56Gyr, âge estimé des deux planètes. La courbe pointillée est la transition de phase du premier ordre entre de l'hydrogène moléculaire et de l'hydrogène métallique prédite par Saumon et Chabrier [12]. La ligne notée, 50%, correspond à la théorie de Ross [112] qui prévoit un passage continu à l'état métallique. Le long de cette ligne la moitié des atomes sont sous forme de molécules et les autres non liés. La région hachurée horizontal correspond à la zone d'immiscibilité de la théorie de Hubbard et Dewitt [145]. Les zones hachurées verticalement en bas et en haut correspondent respectivement à la théorie de Pfaffenzeller et une modification de cette même théorie faite par Fortney et Hubbard [146]. Les limites de ces 3 zones correspondents à Y=0.27 en haut et Y=0.21 en bas.

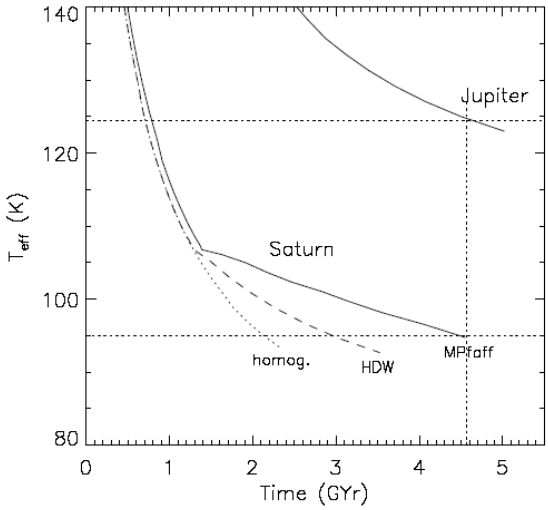


FIG. 10.4 – Evolution de l'âge de Jupiter et Saturne en fonction de la température effective [147]. La courbe pointillée pour Saturne et solide pour Jupiter correspondent à des évolutions homogènes dans les deux planètes sans séparation de phase. La courbe hachurée prend en compte le diagramme de Hubbard et Dewitt alors que la courbe solide pour Saturne prend en compte le modèle modifié de Pfaffenzeller.

rieurs de Jupiter et de Saturne (figure 10.3). Le modèle ainsi modifié donne une très bonne estimation de l'âge 4.5Gyr.

En comparant ainsi les théories avec les données existantes sur les planètes, une première sélection peut être faite.

Ainsi d'après Stevenson et Salpeter, la différentiation de l'hélium serait la principale cause de l'excès de luminosité observé. L'évolution de la planète s'écarte d'une évolution homogène. Cette séparation peut se produire soit à cause d'une simple immiscibilité de l'hélium avec l'hydrogène, soit provenir d'une transition de phase du 1er ordre entre l'hydrogène moléculaire et l'hydrogène métallique entraînant une discontinuité dans la fraction d'hélium. Quelle que soit la cause de cette différenciation, une fois qu'elle est amorcée, elle a un effet dominant sur le refroidissement de la planète qui est alors ralenti. Pour Jupiter, cette différentiation serait très jeune ou devrait commencer dans peu de temps. Pour Saturne, elle aurait déjà commencé.

10.4 Premiers résultats

Les cibles précomprimées sont particulièrement adaptées à l'étude des mélanges H_2/He. En effet d'une part, les chargements gazeux sont simples et rapides alors que de manière cryogénique ils sont impossibles à réaliser. Et d'autre part, on peut couvrir un domaine large en densité avec un faisceau d'Hugoniots.

10.4.1 Comment détecter la miscibilité ?

La miscibilité entre l'hélium et l'hydrogène ne va pas être détectée au niveau de chaque point indépendamment. C'est l'évolution et en particulier les variations de température et de réflectivité qui seront le signe d'un changement. De la même manière que l'on observe une diminution de la température le long de l'Hugoniot fluide par rapport à l'Hugoniot solide à cause de l'entropie de fusion, il devrait exister une diminution de température lors du passage de la zone miscible à la zone non miscible. Il reste à savoir si cette diminution pourra être observée avec les barres d'erreur de nos mesures. On peut s'attendre également à des variations de réflectivité lors de la démixion.

10.4.2 Mesures

5 tirs ont été effectués avec le laser OMEGA à Rochester. Les résultats sont présentés dans le tableau 10.1.

P_0 (GPa)	ρ_0	$U_{S_{qz}}(km/s)$	$U_{S_{h2}}(km/s)$	$U_{p_{h2}}(km/s)$	P (GPa)	ρ/ρ_0	R	T (eV)
0.42	0.1707	19.6(4)	27.9(10)	19.6(8)	94(7)	3.3(5/8)	8(1)	1.45(22)
0.4	0.1670	18.5(5)	24.1(5)	18.4(9)	74(6)	4.2(7/12)	9(3)	1.35(23)
0.43	0.1725	15.0(6)	22.2(10)	13.5(10)	52(6)	2.5(4/6)	4(3)	0.75(14)
0.41	0.1689	15.6(2)	20.7(5)	14.5(4)	51(3)	3.3(3/5)	0	0.81(11)
0.4	0.1670	21.8(5)	30.6(5)	22.6(10)	116(9/10)	3.8(5/8)	19(4)	2.32(52)

TAB. 10.1 – Ensemble des points obtenus sur les mélanges hydrogène/helium (50/50). Les nombres indiqués entre parenthèses sont l'erreur sur le dernier chiffre du résultat. L'erreur sur la pression initiale est de 0.2 kbar. Elle entraîne ainsi une erreur sur la densité initiale. Cette erreur n'est pas indiquée dans le tableau, mais elle a été prise en compte dans l'évaluation de l'ensemble des barres d'erreur.

La figure 10.5 présente les résultats dans le plan T-P avec les diagrammes de phase de He et H_2. Nos points sont ainsi situés dans une zone de transition pour l'hydrogène entre H_2 et H^+ et dans une

zone non conductrice pour l'hélium. Ils sont situés trop hauts en température pour croiser l'isentrope de Jupiter. Il serait nécessaire d'augmenter la précompression pour s'en rapprocher.

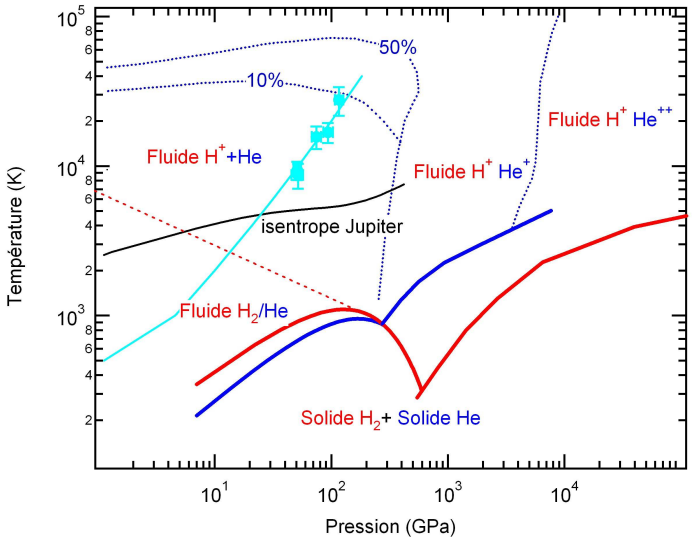


FIG. 10.5 – Points obtenus dans le plan T-P pour les mélanges He/H_2. Les courbes solides épaisses bleues et rouges correspondent aux courbes de fusion de l'hélium et de l'hydrogène. Les courbes en pointillés bleus correspondent aux passages entre un état He et un état He^+. Les % indiquent les % d'ionisation. Nos points expérimentaux sont les ronds bleus clairs. La courbe bleue claire est l'hugoniot d'un mélange idéal 50/50.

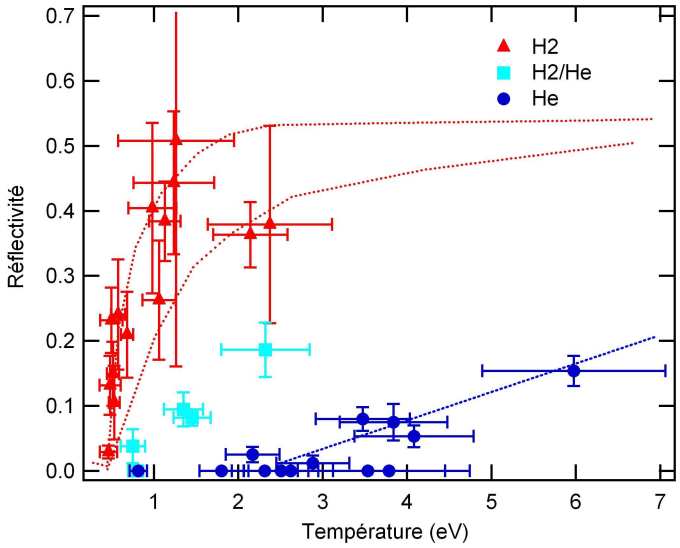


FIG. 10.6 – Réflectivité dans le plan P-P des points He, H_2 et He/H_2. L'échelle de couleur correspond à la réflectivité. Les ronds, triangles et carrés correspondent aux points de l'hélium, l'hydrogène et les mélanges He/H_2.

La figure 10.6 présente la réflectivité de l'hélium, de l'hydrogène et des mélanges en fonction de la température. Entre 1 et 2 eV et 50 et 100 GPa, l'hélium seul n'est pas réfléchissant alors que l'hydrogène l'est. Si He et H_2 ne sont pas miscibles, on devrait mesurer la réflectivité de l'élément le plus réfléchissant qui serait dans ce cas l'hydrogène (40%). Hors on observe une réflectivité intermédiaire

autour de 10%. Cela peut provenir de deux phénomènes. Soit He et H_2 sont miscibles et on mesure donc la réflectivité du mélange. Soit ils ne sont pas miscibles, mais comme le soulignait Militzer [143], les molécules H_2 sont influencées par la présence des atomes d'hélium. On observe la formation de liaisons H-H non présentes dans le diagramme pur de l'hydrogène. Les atomes d'hélium retarderaient ainsi la dissociation et l'ionisation des molécules d'hydrogène entraînant ainsi pour une pression et une température une réflectivité plus faible. Il n'apparaît cependant aucun signe de séparation de phase. Les points sont situés le long de l'Hugoniot d'un mélange idéal dans le plan P-T.

10.5 Conclusion

Les cibles précomprimées offrent la **possibilité d'étudier les mélanges** grâce un chargement gazeux simple et un état initial de mélange homogène avec différentes densités. Ces premiers tirs constituent le début de l'étude et montrent la faisabilité de mesures correspondant non plus à l'extérieur mais à l'intérieur des planètes.

Une courbe **Hugoniot à 4 kbar** a été étudiée. Aucune discontinuité n'est apparue et la réflectivité est intermédiaire entre un système pur hydrogène et pur hélium. Il n'y a **pas de signe évident de séparation de phase**.

Les conditions atteintes correspondent à la surface de Jupiter (90% du rayon). Pour se rapprocher du centre et de la possible zone de démixion, il faudrait **augmenter la précompression**.

Cinquième partie

Conclusion

Bilan Les modèles sont nombreux et très variés pour décrire l'équation d'état d'un matériau. Ils sont en général valables dans un domaine restreint du diagramme de phase et des approximations sont souvent nécessaires. La zone de la "Warm Dense Matter" est particulièrement intéressante car elle est située à la limite de la matière condensée et des plasmas. Les données expérimentales sont alors une donnée essentielle pour le développement des modèles et des codes de simulations en général. Le couplage d'une approche statique et dynamique permet d'explorer cette partie dense et tiède du diagramme de phase encore jamais étudiée expérimentalement auparavant.

L'objectif de cette thèse était de développer cette nouvelle approche de chocs laser sur cibles précomprimées et d'acquérir des premières mesures précises sur le diamant, l'hélium, l'hydrogène et les mélanges hydrogène/hélium.

Dans le but d'améliorer la précision des mesures, précision indispensable pour permettre une discrimination entre les différentes théories, une nouvelle métrologie basée sur le quartz a été développée. Le quartz sert de référence pour la mesure de la pression et de la densité et dans ce but, un modèle de détente isentrope, basé sur une approximation de type Grüneisen, a été développé. Le quartz sert également de référence in-situ pour la mesure de la température et de la réflectivité des échantillons.

Des simulations numériques ont été réalisées pour faciliter la mise en oeuvre des expériences. Elles ont permis de dimensionner l'expérience (estimation des temps de transit, influence de l'impulsion laser), d'identifier les problèmes de préchauffage (optimiser la configuration de la cible) et enfin d'évaluer la stationnarité et l'évolution de la vitesse des chocs (différence entre vitesse estimée à l'interface et vitesse calculée par temps de transit).

Nous avons ainsi, en couplant les chocs laser et les cellules à enclumes diamant et en utilisant cette nouvelle métrologie, étudié 3 principaux systèmes, le diamant, l'hélium et l'hydrogène et un mélange hydrogène/hélium pour plusieurs précompressions.

L'étude sur le diamant a permis de mettre en évidence une discontinuité de volume négative à la fusion et donc l'existence d'un maximum sur sa courbe de fusion. Ces résultats sont en accord avec plusieurs modèles existants et permettent ainsi une première discrimination. Ces résultats vont être complétés dans peu de temps par une nouvelle expérience sur le diamant avec la Ligne d'Intégration Laser (LIL) à Bordeaux. Des chocs plus forts seront alors générés complétant alors l'hugoniot à très hautes pressions.

Les données obtenues sur l'hélium sont en très bon accord avec le modèle de Saumon-Chabrier. Ces résultats nous ont permis de gagner une certaine confiance dans la métrologie du quartz et d'obtenir des premiers résultats sur l'évolution de la réflectivité de l'hélium à hautes pressions. Le domaine d'ionisation en pression n'a pas encore pu être atteint. Il faudrait pour cela avoir une précompression de l'ordre de 15 GPa et une intensité laser plus forte. Un maximum de compression qui dépend de la densité initiale est montré.

Les résultats obtenus sur le deutérium sont en bon accord avec les résultats les plus récents. Cela nous a permis à nouveau de valider la métrologie du quartz. Les résultats sur l'hydrogène ont mis en avant les limites de la métrologie du quartz. En effet le maximum de compression dépend du modèle utilisé. Les mesures de réflectivité ont mis en évidence le passage continu entre un état isolant et un état conducteur dans le domaine étudié et ont permis une première estimation de l'évolution du gap en fonction de la densité. Ces résultats sont en très bon accord avec les résultats de Nellis.

Les cibles précomprimées sont particulièrement adaptées pour l'étude des mélanges. Un premier mélange hydrogène/helium à 50/50 a été étudié. Aucun signe de séparation de phase n'a été mis en évidence. C'est la première fois que des mesures dans les conditions de l'intérieur de Jupiter sont éffectuées.

Perspectives La métrologie basée sur le quartz est très prometteuse et a donné de très bons résultats pour l'hélium et le diamant, mais a montré des limites pour l'hydrogène. En effet, étant très peu dense, on est à la limite du domaine d'application de la détente du quartz. Pour réaliser des mesures fiables, il apparaît nécessaire d'avoir des données sur la détente du quartz pour mieux contraindre le modèle. Une équipe de Rochester est en train d'étudier cette détente et devrait apporter dans peu de temps les données expérimentales manquantes. Même si cette métrologie n'est pas encore parfaite, les mesures étant faites par rapport à celle-ci, si l'équation d'état du quartz est améliorée par la suite, les résultats pourront toujours être affinés ensuite.

Pour les différents systèmes, la précompression n'est pas encore suffisante pour atteindre le domaine d'ionisation en pression. Une des prochaines étapes est donc d'augmenter la précompression pour atteindre des domaines plus denses.

L'utilisation de lasers plus puissants comme la LIL (30 kJ) va permettre d'atteindre des pressions plus hautes le long de l'Hugoniot et ainsi de mettre en évidence le maximum de compression des différents systèmes et le retour vers un comportement de gaz parfait avec une compression de l'ordre de 4.

Bibliographie

[1] S. Eliezer, A. Ghatak, and H. Hora. *Fundamentals of Equations of State*. Wolrd Scientific Publishing, 2002.

[2] A. W. Lawson and TY. Tang. A diamond bomb for obtaining powder pictures at high pressures. *Review of Scientific instruments*, page 815, 1950.

[3] P. Loubeyre, P. M. Celliers, D. G. Hicks, E. Henry, A. Dewaele, J. Pasley, J. Eggert, M. Koenig, F. Occelli, K. M. Lee, R. Jeanloz, D. Neely, A. Benuzzi-Mounaix, D. Bradley, M. Bastea, S. Moon, and G. W. Collins. Coupling static and dynamic compressios : Frist measurements in dense hydrogen. *High pressure research*, 2003.

[4] T. Guillot. Interiors of giant planets inside and outside the solar system. *Science*, 286 :72, 1999.

[5] L. R. Benedetti, J. H. Ngyuen, W. A. Caldwell, H. Liu, M. Kruger, and R. Jeanloz. Dissociation of CH4 at high pressures and temperatures : Diamond formation in giant planet interiors ? *Science*, 286 :100, 1999.

[6] Ya. B. Zel'dovich and Yu. P. Raizer. *Physics of Shock Waves and Hight Temperature Hydrodynamic Phenomena*. W. D. Hayes and R. F. Probstein, 2002.

[7] A. D. Chijioke, W. J. Nellis, and I .F. Silvera. High pressure equations of state of al, cu, ta and w. *Journal of Apllied Physics*, 98 :073526, 2005.

[8] Jr H. C. Graboske, D. J. Harwood, and F. J. Rogers. Thermodynamic properties of non ideal gases. i. free-energy minimization method. *Physical review*, 186(1) :210, 1969.

[9] G. Fontaine, Jr H. C. Graboske, and H. M. Van Horn. Equations of state for stellar partial ionization zones. *The astrophysical Journal Supplement Series*, 35 :293, 1977.

[10] D. G. Hummer and D. Mihalas. The equation of state for stellar envelopes. i. an occupation probability formalism for the truncation of internal partition functions. *The Astrophysical Journal*, 331 :794, 1988.

[11] C. Winisdoerffer. *Thermodynamique Des Plasmas Denses Dans Les Conditions Astrophysiques*. PhD thesis, Ecole normale supérieure de Lyon, 2003.

[12] D. Saumon, G. Chabrier, and H. M. Van Horn. An equation of state for low mass stars and giant planets. *The Astrophysical Journal Supllement Series*, 99 :713, 1995.

[13] 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 :13, 1970.

[14] R.F. Trunin. Shock compressibility of condensed materials in strong shock waves generated by underground nuclear explosions. *Physics-Uspekhi*, 37(11) :1123, 1994.

[15] R.F. Trunin. Shock compression of condensed materials (laboratory studies). *Physics-Uspekhi*, 44(4) :371, 2001.

[16] S-N Luo, J.L. Mosenfelder, P.D. Asimov, and T.J. Ahrens. Stishovite and its implications in geophysics : New results from shock wave experiments and theoretical modeling. *Physics-Uspekhi*, 45 :435, 2002.

[17] S-N Luo, J.L. Mosenfelder, P.D. Asimov, and T.J. Ahrens. Direct shock wave loading of stishoviste to 235 GPa : Implications for perovskite stability relative to an oxide assemblage at lower mantle conditions. *Geophysical research letters*, 29(14) :1691, 2002.

[18] W. J. Nellis. Shock compression of a free-electron gas. *Journal of Applied Physics*, 94(1) :272, 2003.

[19] N. W. Aschcroft and N. D. Mermin. *Solid State Physics*. 1976.

[20] P. Hohenberg and W. Kohn. Inhomogeneous electron gas. *Physical Review*, 136(3B) :B864, 1964.

[21] W. Kohn and L. J. Sham. Self consistent equations including exchange and correlation effects. *Physical Review*, 140(4A) :A1133, 1965.

[22] N. Argaman and G. Makov. Density functionnal theory : An introduction. *Am. J. Phys.*, 68(1) :69, 2000.

[23] P. Mora. Introduction aux plasmas créés par laser, 2005. Ecole d'été les Houches "Laser et fusion".

[24] W. Ebeling, A. Förster, V. E. Fortov, V. K. Gryaznov, and A. Ya. Polishchuk. *Thermophysical Properties of Hot Dense Plasmas*. B. G. teubner Verlagsgesellschaft, Stuttgart, Leipzig, 1991.

[25] N. W. Ashcroft and N. D. Mermin. *Solid State Physics*. Saunders Company, 1976.

[26] N. Mott. *Metal-Insulator Transitions*. Taylor and Francis, 1990.

[27] G. W. Collins, L. B. Da. Silva, P. Celliers, D. M. Gold, M. E. Foord, R. J. Wallace, A. Ng, S. V. Weber, K. S. Budil, and R. Cauble. Maesurements of the equation of state of deuterium at the fluid insulator-metal transition. *Science*, 281 :1178, 1998.

[28] A. Benuzzi-Mounaix, M. Koenig, G. Huser, B. Faral, D. Batani, E. Henry, M. Tomasini, B. Marchet, M. Boustie T. A. Hall and, Th. De Rességuier, M. Hallouin, F. Guyot, D. Andrault, and Th. Charpin. Absolute equation of state measurements of iron using laser driven shocks. *Physics of plasmas*, 9(6) :2466, 2002.

[29] J. H. Eggert, K. A. Goettel, and I. F. Silvera. Ruby at high pressure. i. optical line shifts to 156 GPa. *Physical review B*, 40(8) :5724, 1989.

[30] J. H. Eggert, K. A. Goettel, and I. F. Silvera. Ruby at high pressure. II. fluoresence lifetime of the r line to 130 GPa. *Physical review B*, 40(8) :5733, 1989.

[31] A. H. Jahren, M. B. Kruger, and R. Jeanloz. Alexandrite as a high-temperature pressure calibrant, and implications for the ruby-fluorescence scale. *Journal of Applied Physics*, 71 :1579, 1991.

[32] L. M. Barker. Inteferometer technique for measuring the dynamic mechanical properties of materials. *Review of scientific instruments*, 36(11) :1617, 1965.

[33] L. M. Barker and R. E. Hollencbach. Shock-wave studies of PMMA, fused silica, and sapphire. *J. Appl. Phys.*, 41(10), 1970.

[34] L. M. Barker and R. E. Hollenbach. Laser interferometer for measuring high velocities of any reflecting surface. *J. Appl. Phys.*, 43(11) :4669, 1972.

[35] L. M. Barker and W. SchulerK. Correction to the velocity per fringe relationship for the visar interferometer. *J. Appl. Phys.*, 45(8) :3692, 1974.

[36] D. R. Goosman. Analysis of the laser velocity interferometer. *J. Appl. Phys.*, 46(8) :3516, 1975.

[37] D. Hayes. Unsteady compression waves in interferometer windows. *J. Appl. Phys.*, 89(11) :6484, 2001.

[38] M. Takeda, H. Ina, and S. Kobayashi. *Journal of the Optical Society of America*, 72 :156, 1982.

[39] P. M. Celliers, D. K. Bradley, G. W. Collins, D. G. Hicks, T. R. Boehly, and W. J. Armstrong. Line-imaging velocimeter for shock diagnostics at the omage laser facility. *Review of scientific instruments*, 75(11) :4916, 2004.

[40] J. B. Liu and P. D. Ronney. Modified fourier transform method for interferogram fringe pattern analysis. *Applied optics*, 36(25) :6231, 1997.

[41] W. F. Hemsing. Velocity sensing interferometer (VISAR) modification. *Review of scientific instruments*, 50(1) :73, 1979.

[42] C. E. Ragan III. Ultrahigh-pressure shock-wave experiments. *Physical Review A*, 21 :458, 1980.

[43] C. E. Ragan III. Shock-wave experiments at threefold compression. *Physical Review A*, 29 :1391, 1984.

[44] 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. *Physical Review Letters*, 97 :025502, 2006.

[45] G. I. Kerley. Equations of state for composite materials. Technical report, Sandia National Laboratories, 1999.

[46] J. Berger and S. Joigneau. Au sujet de la relation linéaire existant entre la vitesse matérielle et la vitess de l'onde de choc se propageant dans un métal. Technical Report R-1465, CEA, 1960.

[47] B. J. Adler, W. Paul, and D. W. Warschauer. *Solids Under Pressure*. McGraw-Hill Book Co., 1963.

[48] G. W. Swan. A theory for the slope of the shock-wave velocity against particle velocity curve. *J. Phys. D : Appl. Phys.*, 4 :1077, 1971.

[49] A. L. Ruoff. Linear shock-velocity-particle-celocity relationship. *Journal of Applied Physics*, 38 :4976, 1967.

[50] J. D. Johnson. The features of the principal hugoniot. In Schmidt/Dandekar/Forbes, editor, *Shock Compression of Condensed Matter*, page 27, 1997.

[51] 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 :082702, 2005.

[52] V.A. Bugaeva, A.A. Evstigneev, and R.F. Trunin. Analysis of calculation data on the adiabats of expansion for copper, iron, and aluminium. *High temperature*, 34(5) :674, 1996.

[53] M.V. Zhernokletov, G.V. Simakov, Y.N. Sutulov, and R.F. Trunin. Expansion isentropse of aluminium, iron, molybdenum, lead, and tantalum. *High Temperature*, 33(1) :36, 1995.

[54] J. Enig. A complete E, P, V, T, S thermodynamic description of metals based on the P, u mirror-image approximation. *Journal of Applied Physics*, 34 :746, 1963.

[55] J. M. Walsh and R. H. Christian. Equation of stae of metals from shock wave measurements. *Physical Review*, 97 :1544, 1955.

[56] J. M. Walsh, M. H. Rice, R. G. McQueen, and F. L. Yarger. Shock-wave compression of 27 metals. equations of state of metals. *Physical Review*, 108 :196, 1957.

[57] J. M. Walsh and M. H. Rice. Dynamic compression of liquids from measurements on strong shock waves. *The Journal of Chemical Physics*, 26 :815, 1957.

[58] R. G. McQueen and S. P. Marsh. Equation of state for 19 metallic elements from shock-wave measurements to 2 megabars. *Journal of Applied Physics*, 31 :1253, 1960.

[59] T. W. Johnston and J. M. Dawson. Correct values for high frequency power absorption by inverse bremsstrahlung in plasmas. *Physics of fluids*, 16(5) :722, 1973.

[60] H. Watanabe. *High Pressure Reasearch in Geophysics (Adv. in Earth and Planetary Sci, Vol 12)*, page 441, 1982.

[61] Y. Laudernet, J. Clerouin, and S. Mazevet. Ab initio simulations of the electrical and optical properties of shock-compressed SiO2. *Physical Review B*, 70 :165108, 2004.

[62] R. G. McQueen, S. P. Marsh, J. W. Taylor, J. N. Fritz, and W. J. Carter. *High-velocity Impact Phenomena*. New York, Academic, 1970.

[63] P. R. Bevington and D. K. Robinson. *Data Reduction and Error Analysis for the Physical Sciences*. McGraw Hill Companies, Inc, 1969.

[64] P. Alaterre. *Spectroscopie X Des Plasmas Crées Par Laser ; Applications À la Dtéermination Des Gradients de Densité et de Température*. PhD thesis, Paris VI, 1984.

[65] J. Dawson and C. Oberman. High frequency conductivity and the emission and absorption coefficients of a fully ionized plasma. *Physics of Fluids*, 5(5) :517, 1962.

[66] J. M. Dawson. On the production of plasma by giant pulse lasers. *Physics of fluids*, 7(7) :981, 1964.

[67] P. Mora. Theoritical model of absorption of laser light by a plasma. *Physics of Fluid*, 25(6) :1051, 1982.

[68] Y. Kato, K. Mima, N. Miyanaga, S. Arinaga, Y. Kitagawa, M. Nakatsuka, and C. Yamanaka. Random phasing of high power lasers for uniform tagert acceleration and plasma-instability suppression. *Physical Review Letters*, 53(11) :1057, 1984.

[69] T. H. Bett, C. N. Danson, P. Jinks, D. A. Pepler, I. N. Ross, and R. M. Stevenson. Binary phase zone-plate arrays for laser-beam spatial-intensity distribution conversion. *Applied Optics*, 34(20) :4025, 1995.

[70] S. Skupsky, R.W. Short, T. Kessler, R. S. Craxton, S. Letzring, and J. M. Soures. Improved laser-beam uniformity using the angular dispersion of frequency-modulated light. *Journal of Applied Physics*, 66(8) :3456, 1989.

[71] F. P. Bundy, W. A. Bassett, M. S. Weathers, R. J. Hemley, H. K. Mao, and A. F. Goncharov. The pressure-tempertaure phase and transformation diagram for carbon updated through 1994. *Carbon*, 34 :141, 1996.

[72] M. P. Grumbach and R. M. Martin. Phase diagram of carbon at high pressures and temperatures. *Physical Review B*, 54 :15730, 1996.

[73] X. Wang, S. Scandolo, and R. Car. Carbon phase diagram from ab initio molecular dynamics. *Physical Review Letters*, 95 :185701, 2005.

[74] A. F. Correa, S. A. Bonev, and G. Galli. Carbon under extrem conditions : Phase boudaries and electronic properties from first-principle theory. *PNAS*, 103 :1204, 2006.

[75] J. N. Glosli and F. H. Ree. The melting line of diamond determined via atomistic computer simulations. *Journal of Chemical Physics*, 110 :441, 1999.

[76] L. M. Ghiringhelli, J. H. Los, E. J. Meijer, A. Fasolino, and D. Frenkel. Modeling the phase diagram of carbon. *Physical Review Letters*, 94 :145701 1, 2005.

[77] L. E. Fried and W. M. Howard. Explicit gibbs free energy equation of state applied to the carbon phase diagram. *Physical Review B*, 61(13) :8734, 2000.

[78] M. N. Pavlovskii. Shock compression of diamond. *Soviet Physics- Solid State*, 13 :741, 1971.

[79] H. Nagao, K. G. Nakamura, K. Kondo, N. Osaki, K. Takamatsu, T. Ono, D. Ichinose, K. A. Tanaka, K. Wakabayashi, K. Okada, M. Yoshida, M. Nakai, K. Nagai, K. Shigemori, T. Sakaiya, and K. Otani. Hugoniot measurement of diamond under laser shock compression up to 2 TPa. *Physics of Plasmas*, 13 :052705, 2006.

[80] D. K. Bradley, J. H. Eggert, D. G. Hicks, P. M. Celliers, P. M. Moon, S. J. Cauble, and G. W. Collins. Shock compressing diamond to a conducting fluid. *Physical Review Letters*, 1 :195506, 2004.

[81] M. Van Thiel and F. H. Ree. *High Pressure Research*, 10 :607, 1992.

[82] D. F. Edwards and H. R. Philipp. *Handbook of Optical Constants of Solids*. Academic Press, 1985.

[83] S. P. Marsh. *Shock Hugoniot Data*. University of California, 1980.

[84] K. Kondo and T. Ahrens. Shock compression of diamond crystal. *Geophysical Research Letter*, 10 :281, 1983.

[85] W. B. Hubbard, M. Podolak, and D. J. Stevenson. *The Interior of Neptune*. 1995.

[86] W. Ebeling, A. Forster, and V. E. Fortov et Al. *Thermophysical Properties of Hot Dense Plasmas*. Leipzig : Teubner, Stuttgart, 1991.

[87] C. Winisdoerffer and G. Chabrier. Free-energy model for fluid helium at high density. *Physical Review E*, 71 :026402, 2005.

[88] P. Loubeyre. Three-body exchange interaction in dense helium. *Physical Review Letters*, 58(18) :1857, 1987.

[89] D. Saumon and T. Guillot. Shock compression of deuterium and the interiors of jupiter and saturn. *The Astrophysical Journal*, 609 :1170, 2004.

[90] P. M. Kowalski, D. Saumon, and S. Mazevet. Non ideal equation of state, refraction and opacities in very coll, helium rich white dwarf atmospheres. In *14th European Workshop on White Dwarfs, APS Conference Series*, volume 999, 2005.

[91] B. Hansen. The astrophysics of cool white dwarfs. *Physics Reports*, 399 :1, 2004.

[92] W. B. Hubbard, T. Guillot, J. I. Lunine, A. Burrows, D. Saumon, M. S. Marley, and R. S. Freedman. Liquid metallic hydrogen and the structure of brown dwarfs and giant planets. *Physics of Plasmas*, 4(5) :2011, 1997.

[93] R. L. Mills, D. H. Liebenberg, and J. C. Bronson. Equation of state and meltin properties of 4he from measurements to 20kbar. *Physical Review B*, 21(11) :5137, 1980.

[94] R. Le Toullec, P. Loubeyre, and J. P. Pinceaux. Refractive index measurements of dense helium up to 16 GPa at t=298 k : Analysis of its thermodynamic and electronic properties. *Physical Review B*, 40(4) :2368, 1989.

[95] A. Dewaele, J. H. Eggert, P. Loubeyre, and R. Le Toullec. Measurement of refractive index and equation of state in dense he, h2, H2O, and ne under high pressure in a diamond anvil cell. *Physical Review B*, 67 :094112, 2003.

[96] A. Driessen, E. Van der Poll, and I. F. Silvera. Equation of state of solid 4he. *Physical Review B*, 33(5) :3269, 1986.

[97] F. Datchi, P. Loubeyre, and R. Le Toullec. Extended and accurate determination of the melting curves of argon, helium, ice (H2O), and hydrogen (h2). *Physical Review B*, 61(10) :6535, 2000.

[98] W. L. Vos, M. G. E. Van Hinsberg, and J. A. Schouten. High pressure triple point in helium : The melting line of helium up to 240 kbar. *Physical Review B*, 42(10) :6106, 1990.

[99] R. K. Crawford and W. B. Daniels. Experimental determination of the p-t melting curve of kr, ne and he. *Journal of Chemical Physics*, 55(12) :5651, 1971.

[100] P. Loubeyre, J. M. Besson, J. P. Pinceaux, and J. P. Hansen. High pressure melting curve of 4he. *Physical Review Letters*, 49(16) :1172, 1982.

[101] W. J. Nellis, N. C. Holmes, A. C. Mitchell, R. J. Trainor, G. K. Governo, M. Ross, and D. A. Young. Shock compression of liquid helium to 56 GPa (560 kbar). *Physical Review Letters*, 53(13) :1248, 1984.

[102] M. Ross. A high density fluid pertubation theory based on an inverse 12th power hard sphere reference system. *Journal of Chemical Physics*, 71(4) :1567, 1979.

[103] B. Militzer. Anomalous compressibility of liquid helium at high pressure. *Submitted to Physical Review Letters*, 2006.

[104] J. M. Aparicio and G. Chabrier. Free-energy model for fluid atomic helium at high density. *Physical Review E*, 50(6) :4948, 1994.

[105] R. A. Aziz and M. J. Slaman. An examination of ab initio results for the helium potential energy curve. *Journal of Chemical Physics*, 94(12) :8047, 1991.

[106] D. M. Ceperley and H. Partridge. The he2 potential at small distances. *Journal of Chemical Physics*, 84(2) :820, 1966.

[107] R. LeToullec, P. Loubeyre, and JP. Pinceaux. Refractive index measurements of dense helium up to 16 GPa at 298k ; analysis of its thermodynamic and electronic properties. *Physical Review B*, 40(4) :2368, 1989.

[108] Horie Furnish, Thadhani, editor. *Thermophysical Properties of Helium under Multiple Shock Compression*, 2001.

[109] V. E. Fortov, V. Ya. Ternovoi, M. V. Zhernokletov, M. A. Mochalov, A. L. Mikhailov, A. S. Filimonov, A. A. Pyalling, V. B. Mintsev, V. K. Gryaznov, and I. L. Iosilevskii. Pressure-produced ionization of non ideal plasma in a megabar range of dynamic pressures. *Journal of Experimental and Theoritical Physics*, 97(2) :259, 2003.

[110] N. W. Ashcroft. The hydrogen liquids. *Journal of Physics : Condensed Matter*, 12 :A129, 2000.

[111] S. A. Bonev, E. Schwegler, T. Ogitsu, and G. Galli. A quantum fluid of metallic hydrogen suggested by first-principles calculations. *Nature*, 431 :669, 2004.

[112] M. Ross. Linear mixing model for shock compressed liquid deuterium. *Physical Review B*, 58(2) :669, 1998.

[113] K. A. Johnson and N. W. Aschcroft. Structure and bandgap closure in dense hydrogen. *Nature*, 403 :632, 2000.

[114] S. Scandolo. Liquid-liquid phase transition in compressed hydrogne from first principles simulations. *PNAS*, 100(6) :3051, 2003.

[115] D. Saumon and G. Chabrier. Fluid hydrogen at high density : Pressure ionization. *Physical Review A*, 46(4) :2084, 1992.

[116] V. Diatschenko, C. W. Chu, D. H. Liebenberg, D. A. Young, M. Ross, and R. L. Mills. Melting curves of molecular hydrogen and molecular deuterium under high pressurs between 20 and 373. *Physical Review B*, 32(1) :381, 1985.

[117] S. T. Weir, A. C. Mitchell, and W. J. Nellis. Metallization of fluid molecular hydrogen at 140 GPa (1.4 mbar). *Physical Review Letters*, 76(11) :1860, 1996.

[118] W. J. Nellis, A. C. Mitchell, P. C. McCandless, D. J. Erskine, and S. T. Weir. Electronic energy gap of molecular hydrogen from electrical conductivity measurements at high shock pressures. *Physical Review Letters*, 68(19) :2937, 1992.

[119] R. J. Hemley, H. K. Mao, L. W. Finger, A. P. Jephcoat, R. M. Hazen, and C. S. Zha. Equation of state of solid hydrogen and deuterium form single-crystal x-ray diffraction to 26.5 GPa. *Physical Review B*, 42(10) :6458, 1990.

[120] L.B. Da Silva, P. Celliers, G. W. Collins, K. S. Budil, N. C. Holmes, T. W. Barbee Jr., B. A. Hammel, J. D. Kilkenny, R. J. Wallace, M. Ross, and R. Cauble. Absolute equation of state measurements on shocked liquid deuterium up to 200 GPa (2 mbar). *Physical Review Letters*, 78(3) :483, 1997.

[121] S. I. Belov, G. V. Boriskov, A. I. Bykov, R. I. Il'kaev, N. B. Luk'yanov, A. Ya. Matveev, O. L. Mikhailova, V. D. Selemi, G. V. Simakov, R. F. Trunin, I. P. Trusov, V. D. Urlin, V. E. Fortov, and A. N. Shuikin. Shock compression of solid deuterium. *JETP Letters*, 76(7) :433, 2002.

[122] M. D. Knudson, D. L. Hanson, J. E. Bailey, C. A. Hall, and J. R. Asay. Equation of state measurements in liquid deuterium to 70 GPa. *Physical Review Letters*, 87(22) :225501, 2001.

[123] E. Wigner and H. B. Huntington. On the possibility of a metallic modification of hydrogen. *Journal of Chemical Physics*, 3 :764, 1935.

[124] P. Loubeyre, R. LeToullec, D. Hausermann, M. Hanfland, R. J. Hemley, H. K. Mao, and L. W. Finger. X-ray diffraction and equation of state of hydrogen at megabar pressures. *Nature*, 383 :702, 1996.

[125] P. Loubeyre, F. Occelli, and R. LeToullec. Optical studies of solid hydrogen to 320 GPa and evidence for black hydrogen. *Nature*, 416 :613, 2002.

[126] W. J. Nellis, S. T. Weir, and A. C. Mitchell. Minimum metallic conductivity of fluid hydrogen at 140 GPa (1.4 mbar). *Physical Review B*, 59(5) :3434, 1999.

[127] K. F. Herzfeld. On atomic properties which make an element a metal. *Physical Review*, 29 :701, 1927.

[128] W. J. Nellis. Dynamic compression of materials : Metallization of fluid hydrogen at high pressures. *Reports on progress in physics*, 69 :1479, 2006.

[129] M. Ross, F. H. Ree, and D. A. Young. The equation of state of molecular hydrogen at very high density. *Journal of Chemical Physic*, 79(3) :1487, 1983.

[130] N .C Holmes, M. Ross, and W. J. Nellis. Temperature measurements and dissociation of shock-compressed liquid deuterium and hydrogen. *Physical Review B*, 52(22) :15835, 1995.

[131] D. Saumon and G. Chabrier. Fluid hydrogen at high density : The plasma phase transition. *Physical Review Letters*, 62(20) :2397, 1989.

[132] D. Saumon and G. Chabrier. Fluid hydrogen at high density : Pressure dissociation. *Physical Review A*, 44(8) :5122, 1991.

[133] D. Saumon, G. Chabrier Nad D. J. Wagner, and X. Xie. Modeling pressure ionization of hydroge in the context of astrophysics. *The Astrophysical Journal ?*, page 9909168, 1999.

[134] T. J. Lenosky, S. R. Bickham, J. D. Kress, and L. A. Collins. Density-functionnal calculation of the hugoniot of shocked liquid deuterium. *Physical Review B*, 61(1) :1, 2000.

[135] 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, 2005.

[136] G. Chabrier, D. Saumon, W. B. Hubbard, and J. I. Lunine. The molecular metallic transition of hydrogen and the structure of jupiter et saturn. *The Astrophysical Journal*, 391 :817, 1992.

[137] W. B. Hubbard. The core problem. *Nature*, 431 :32, 2004.

[138] D. J. Stevenson. Thermodynamics and phase separation of dense fully ionized hydrogen-helium fluid mixtures. *Physical Review B*, 12(10) :3999, 1975.

[139] O. Pfaffenzeller, D. Hohl, and P. Ballone. Miscibility of hydrogen and helium under astrophysical conditions. *Physical Review Letters*, 74(13) :2599, 1995.

[140] J. A. Schouten, A. De Kuijper, and J. P. J. Michels. Critical line of he-h2 up to 2500 k and the influence of attraction on fluid-fluid separation. *Physical Review B*, 44(13) :6630, 1991.

[141] L. C. Van Den Bergh and J. A. Schouten. Prediction of fluid-fluid and fluid-solid equilibria in the molecular system heliium-hydrogen up to 1mbar. *Journal of Chemical Physics*, 89(4) :2336, 1988.

[142] D. J. Stevenson and E. E. Salpeter. The phase diagram and transport properties for hydrogen-helium fluid planets. *The Astrophysical Journal Supplement Series*, 35 :221, 1977.

[143] B. Militzer. Hydogen helium mixtures at high pressure. In *5th Conference on Cryocrystals and Quantum Crystals*, 2004.

[144] D. J. Stevenson and E. E. Salpeter. The dynamics and helium distribution in hydrogen helium fluid planets. *The Astrophysical Journal Supplement Series*, 35 :239, 1977.

[145] W. B. Hubbard and H. E. DeWitt. Statistical mechanics of light elements at high pressure. VII. a perturbative free energy for arbitrary mixtures of h and he. *The Astrophysical Journal*, 290 :388, 1985.

[146] J. J. Fortney and W. B. Hubbard. Phase separation in giant planets : Inhomogeneous evolution of saturn. *Icarus*, 164 :228, 2003.

[147] J. J. Fortney and W. B. Hubbard. Effects of helium phase separation on the evolution of extra solar giant planets. *The Astrophysical Journal*, 608 :1039, 2004.