



HAL
open science

Propriétés des ablateurs plastiques denses et tièdes pour la fusion par confinement inertiel

Gael Huser

► **To cite this version:**

Gael Huser. Propriétés des ablateurs plastiques denses et tièdes pour la fusion par confinement inertiel. Physique [physics]. Université Paris 6 Pierre et Marie Curie, 2017. tel-01918193

HAL Id: tel-01918193

<https://hal.science/tel-01918193>

Submitted on 25 Sep 2019

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.



Université Paris VI

Thèse d'habilitation à diriger des recherches

Spécialité : Physique

Soutenue publiquement le 21 février 2017, par :

Gaël Huser

**Propriétés des ablateurs plastiques denses
et tièdes pour la fusion par confinement
inertiel**

Devant le jury composé de :

Mme Caterina RICONDA

Professeure, Université Paris VI

Mr Laurent BERTHE

Directeur de Recherches CNRS, PIMM, ENSAM

Mr Gilles MAYNARD

Directeur de Recherches CNRS, LPGP, Université Paris XI

Mr Patrick MORA

Directeur de Recherches CNRS, CPhT, Ecole Polytechnique

Mr Thomas BOEHLY

Senior scientist, Laboratory for Laser Energetics, Université de Rochester

Mr Patrick RENAUDIN

Ingénieur-chercheur, Commissariat à l'Energie Atomique

Présidente

Rapporteur

Rapporteur

Rapporteur

Examineur

Examineur

Propriétés des ablateurs plastiques denses et tièdes pour la fusion par confinement inertiel

Gaël Huser

12 décembre 2016

Table des matières

Introduction	3
1 Caractérisation et contrôle des instabilités hydrodynamiques	11
1.1 Les instabilités hydrodynamiques en FCI	11
1.2 Méthodes expérimentales	16
1.3 Stabilisation du front d'ablation par la diffusion anisotrope	21
1.4 Stabilisation de l'interface pousseur-combustible	26
1.5 Limitation de la technique de radiographie axiale	29
2 Equation d'état et dissociation	31
2.1 Contexte d'utilisation en FCI	32
2.2 Méthodes expérimentales et numériques	35
2.2.1 Mesure de l'Hugoniot par désadaptation d'impédance	35
2.2.2 Calcul de l'Hugoniot par la simulation <i>ab initio</i>	38
2.3 Dissociation le long de l'Hugoniot	41
2.3.1 Premières études sur le plastique dopé au germanium	41
2.3.2 La simulation <i>ab initio</i> utilisée comme outil de prédiction	45
2.3.3 Intégration dans les modèles d'équation d'état	50
2.4 Validation expérimentale	53
2.4.1 Mesures des courbes d'Hugoniot du CH-GDP et du CHOSi	53
2.4.2 Influence de la référence	54
2.5 Conclusion	57
3 Propriétés électroniques	59
3.1 Réflectivité du front de choc	61
3.2 Le modèle de Drude et ses dérivés	63
3.2.1 Modèle de Drude-Sommerfeld	65
3.2.2 Ionisation de Thomas-Fermi par la pression	65
3.2.3 Modèle de fermeture du gap semi-conducteur	65
3.2.4 Saturation de la réflectivité	68
3.3 Calcul de la structure électronique	68
3.3.1 Densités d'états électroniques	69
3.3.2 Formalisme de Kubo-Greenwood	70

Introduction

Ce document présente des travaux de recherche que j'ai effectués depuis l'obtention de mon doctorat de l'École Polytechnique en janvier 2004. En novembre 2004, j'ai été recruté au Commissariat à l'Énergie Atomique (CEA) de Bruyères-le-Châtel en tant qu'ingénieur-chercheur, fonction que j'occupe encore à ce jour. Mon travail au CEA consiste à concevoir et analyser des expériences laser dans le cadre du Programme Simulation de la Direction des applications militaires (DAM).

Un des points clés du Programme Simulation est de réaliser la Fusion par Confinement Inertiel (FCI). Pour y parvenir, l'installation Laser Mégajoule (LMJ)[Casner *et al.* 2015], située au CEA/Cesta en Aquitaine, vient d'être mise en service et fonctionne aujourd'hui avec un nombre réduit de faisceaux et de diagnostics. Aux États-Unis, l'installation National Ignition Facility (NIF)[Miller *et al.* 2004] fonctionne déjà à plein régime de manière régulière depuis plusieurs années. La thématique de la FCI sera le fil conducteur des travaux présentés ici et les études qui s'y rapportent s'articulent autour d'installations laser de tailles différentes. Les installations multi-kJ telles que Omega à l'Université de Rochester sont en général utilisées pour effectuer des expériences intégrées. Elles permettent de tester le comportement de géométries complexes dans des conditions de hautes densités d'énergie et de confronter les mesures aux simulations numériques bidimensionnelles. Les installations de taille moyenne, comme LULI2000 à l'École Polytechnique et GekkoXII à l'Université d'Osaka, délivrent des énergies de l'ordre du kJ et sont plus adaptées pour tester les modèles de physique utilisés comme données d'entrée dans les codes de simulation.

Le schéma choisi pour réaliser la FCI sur le LMJ en France et sur le NIF aux États-Unis est celui de l'attaque indirecte. Dans ce schéma, le combustible thermonucléaire est un mélange de deutérium-tritium (D-T) contenu dans une capsule sphérique. On appelle ablateur le matériau constituant la paroi externe de la capsule. Celui-ci est constitué de plastique dont certaines couches sont dopées avec un Z moyen (Si ou Ge par exemple). Le combustible thermonucléaire est une couche conformée de D-T cryogénique en contact avec l'ablateur. L'épaisseur des couches est de l'ordre de la centaine de microns et le reste de la capsule est rempli de D-T gazeux. Cette capsule est contenue dans une cavité en or remplie d'un gaz léger, typiquement un mélange hydrogène-hélium. Les faisceaux laser n'irradient donc pas directement la capsule, mais plutôt les parois de la cavité. L'énergie laser incidente est alors convertie en rayonnement X qui à son tour implose la capsule. Le gaz de remplissage de la cavité permet de ralentir la détente des parois d'or.

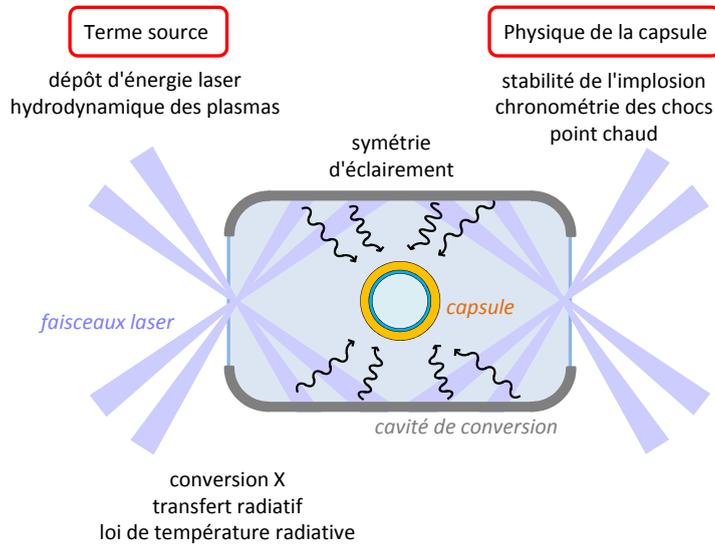


FIGURE 1 – Phénomènes intervenant dans le fonctionnement d'une cible de Fusion par Confinement Inertiel.

Ce schéma d'implosion de la capsule est favorisé car il permet une irradiation plus homogène de la capsule qu'en attaque directe où les faisceaux laser irradient directement la capsule. Néanmoins, il soulève de très nombreux problèmes d'ingénierie et de physique. Nous passons sous silence les défis technologiques liés à l'installation laser et à la cible, et ne montrons dans la figure 1 qu'une vision très simplifiée des questions auxquelles il faut répondre pour maîtriser le fonctionnement d'une cible de FCI en attaque indirecte. Ces questions peuvent se résumer de la sorte : quelle est la quantité d'énergie incidente sur une capsule ? Comment cette énergie est-elle absorbée par la capsule ?

La première question est traitée par la thématique de ce que nous appellerons le terme source. Plus précisément, on cherche à connaître la quantité et la nature de l'énergie incidente sur la capsule connaissant la loi laser incidente sur les entrées de la cavité. Pour cela, nous avons besoin de connaître le dépôt d'énergie laser sur la paroi de la cavité. Celui-ci dépend essentiellement des mécanismes d'interaction laser-plasma, d'interaction entre faisceaux et d'hydrodynamique des plasmas de cavité. La conversion en rayonnement X est régie par le transfert radiatif au niveau des parois et permet de fixer la loi de température radiative. Enfin nous avons besoin de connaître les propriétés d'absorption du plasma qui remplit la cavité pour déterminer la quantité de rayonnement incident sur la capsule.

La seconde question est traitée par la physique de la capsule. A une quantité de rayonnement X incidente donnée, nous cherchons à maîtriser la stabilité de l'implosion, la chronométrie des chocs et enfin la formation du point chaud au centre de la capsule au sein duquel les conditions de densité et de température permettent d'initier les réactions de fusion thermonucléaire.

Enfin, à mi-chemin entre ces deux questions nous pouvons situer le problème de la symétrie d'éclairement. On cherche ici à minimiser les bas modes de déformation qui dépendent essentiellement des pointés et du mouvement des taches laser au cours du fonctionnement de la cible.

Cette rapide description du fonctionnement d'une cible de FCI a pour but de souligner la complexité du fonctionnement un tel objet. Si l'on exprime en termes plus physiques, il faut à la fois maîtriser l'interaction laser-plasma et les effets cinétiques pour le dépôt d'énergie laser, le transfert d'énergie entre faisceaux et les collisions de plasmas, la physique atomique des plasmas chauds pour le transfert radiatif dans les parois et dans la cavité, les équations d'état, les coefficients de transport et les instabilités hydrodynamiques pour la physique de la capsule.

Implosion d'une capsule de FCI

Le dimensionnement des capsules de FCI est déterminé par les conditions nécessaires à l'allumage thermonucléaire. Ces conditions sont obtenues en effectuant un bilan d'énergie du point chaud ; ce bilan doit favoriser l'énergie gagnée par compression par rapport à celle perdue par conduction et rayonnement. C'est à partir de ce bilan d'énergie qu'est déterminée la séquence d'implosion d'une capsule de FCI [Bayer & Juraszek 2002]. Pour comprimer le mélange DT efficacement, il faut comprimer sans chauffer, c'est à dire effectuer une compression isentropique. Pour s'approcher de ce schéma de compression tout en tenant compte des limitations en énergie de l'installation laser, on utilise une succession de chocs. En première approximation, pour un gaz parfait, on peut en effet montrer qu'une compression par choc diffère peu d'une compression isentropique lorsque le saut de pression ne dépasse pas un facteur 4. Cette première approximation permet de construire une séquence de chocs dans une capsule à partir de simulations numériques.

On peut ainsi définir une impulsion laser constituée de paliers successifs qui se traduisent en paliers de température radiative dans la cavité de conversion (Fig. 2). La compression quasi-isentropique dans la capsule s'effectue entre 2-3 Mbar (pression du premier choc) jusqu'à 100 Mbar et environ 10 fois la densité normale. L'impulsion laser possède un piédestal relativement long qui permet de mettre en condition la capsule. En effet, l'interaction du rayonnement avec la capsule, en créant la détente des couches externes de l'ablateur, permet l'établissement d'un gradient de densité qui stabilise la capsule d'un point de vue hydrodynamique. Les 2 ou 3 chocs suivants sont envoyés au cours des dernières nanosecondes de l'impulsion laser et provoquent l'accélération de la capsule vers son centre.

Ces chocs successifs se propagent à travers les épaisseurs d'ablateur et de DT cryogénique puis coalescent dans le DT gazeux pour former une onde de choc sphérique qui conduit à la formation d'un point chaud au centre de la capsule. Le séquençage des chocs doit être maîtrisé avec une très grande précision, de l'ordre de ± 50 -100 ps [Munro *et al.* 2001, Landen *et al.* 2011, Boehly *et al.* 2011], conduisant à des tolérances sur les vitesses de choc de l'ordre du pourcent. Cette contrainte est dictée par le fait que si les

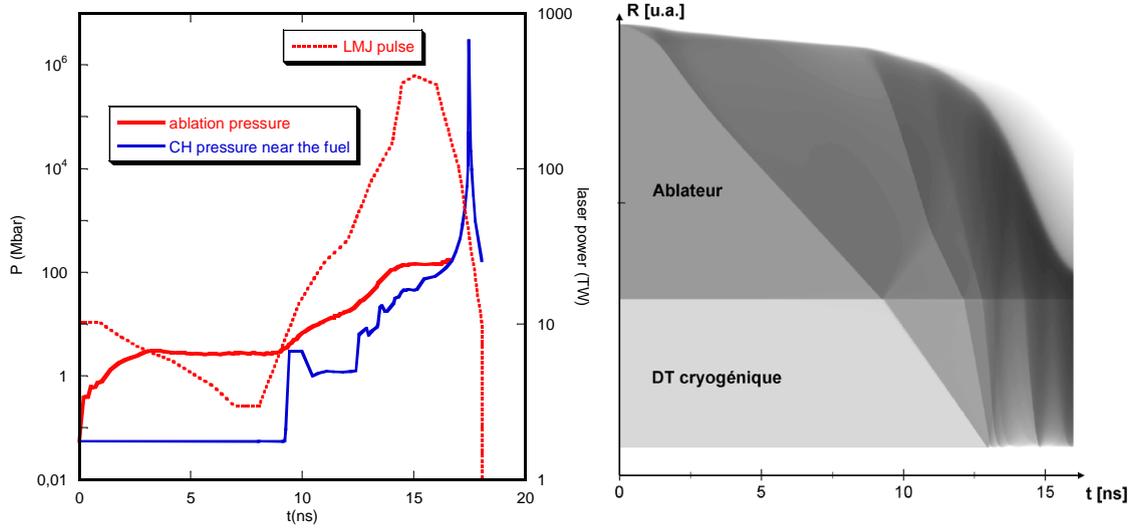


FIGURE 2 – Forme d’impulsion laser et lois de pression au front d’ablation et dans une couche profonde de l’ablateur. Diagramme de marche lagrangien correspondant à droite (simulation FCI2, P. Gauthier).

chocs sont trop proches, alors la coalescence a lieu dans le combustible cryogénique ce qui conduit à des niveaux d’entropie intolérables. S’ils sont trop espacés, le combustible a assez de temps pour se décompresser. Dans les deux cas, le combustible s’éloigne de la compression optimale.

Lorsque la pression générée au centre de la capsule devient suffisamment importante, le combustible accéléré vers le centre ralentit puis stagne. Pendant cette phase de stagnation, qui dure quelques dizaines de picosecondes, l’énergie cinétique acquise au cours de l’implosion est convertie en énergie interne. Les réactions de fusion thermonucléaires sont alors initiées au sein du point chaud, produisant des neutrons de 14 MeV et des particules α de 3,5 MeV. La combustion thermonucléaire a lieu lorsque ces particules α redéposent leur énergie dans le combustible froid entourant le point chaud, générant alors une onde de combustion thermonucléaire. Les conditions limites pour obtenir ce fonctionnement sont données par la température ionique T_{ion} et la densité surfacique ρr . Les conditions dans le point chaud sont ($T_{ion} > 4$ keV, $\rho r > 0,3$ g/cm³). L’onde de combustion se propage dans le combustible adjacent si la densité surfacique de ce dernier est > 1 g/cm². Cette phase d’ignition puis de combustion thermonucléaire ne dure que quelques dizaines de picosecondes, au-delà desquelles l’onde de détente en périphérie de la capsule atteint le centre et décomprime le milieu. Les impulsions les plus performantes obtenues à ce jour sur le NIF ont permis d’obtenir ($T_{ion} = 5$ keV, $\rho r = 0,12-0,15$ g/cm², $P = 126-152$ Gbar) dans le point chaud, correspondant à un gain proche de 2 au niveau de l’énergie interne du combustible [Hurricane *et al.* 2014].

Pour convertir l’énergie cinétique en énergie interne tout en minimisant les pertes, il faut une vitesse d’implosion élevée : la marge de fonctionnement pour l’ignition est

calculée à 370 km/s dans les simulations[Hicks *et al.* 2012]. L'épaisseur de la couche d'ablateur doit donc être optimisée afin d'obtenir le meilleur rendement hydrodynamique. Par ailleurs, pour minimiser les pertes, il faut assurer la symétrie sphérique du point chaud et éviter sa pollution. C'est avec ces considérations que le dimensionnement d'une capsule de FCI se complique, puisqu'il faut alors tenir compte des instabilités hydrodynamiques. Il s'agit là d'un problème majeur à résoudre pour atteindre l'allumage thermonucléaire. Etant donnée la géométrie du problème, il est impossible de tout résoudre par des méthodes analytiques et il faut avoir recours à la simulation numérique bi- et tridimensionnelle pour obtenir une description réaliste des phénomènes. Ces simulations numériques nécessitent des moyens de calcul considérables[Marinak *et al.* 1996] et ont besoin d'être validées par des expériences. Les instabilités hydrodynamiques au niveau du point chaud d'une capsule de FCI se développent sur des temps très courts (de l'ordre de quelques picosecondes) et à des échelles spatiales de l'ordre du micron, ce qui est en deçà des limites de résolution des diagnostics d'imagerie actuellement disponibles. Les expériences dédiées à l'étude de ces instabilités ont donc lieu à des échelles différentes pour effectuer des mesures. Plutôt qu'apporter des réponses directement exploitables à l'échelle d'une capsule de FCI, ces expériences permettent de valider les méthodes et les modèles utilisés dans les simulations à pleine échelle, tels les schémas numériques et les nombreuses options de simulation.

Propriétés des matériaux des capsules

La mécanique des fluides très complexe décrite dans les simulations de capsules de FCI dépend évidemment des propriétés des matériaux utilisés. Il s'agit là d'un très vaste champ de recherches fondamentales à mener puisqu'il nous faut connaître les coefficients de transport (opacités, conductivités) ainsi que les équations d'état le long de tout le chemin thermodynamique de la capsule au cours de son fonctionnement.

Les expériences de FCI menées au cours des années 2000 en France et aux Etats-Unis avaient pour priorités la maîtrise de l'énergétique de la cavité de conversion, de la symétrie d'implosion et des instabilités hydrodynamiques. Plus récemment, suite aux conclusions tirées des premiers tirs à pleine échelle sur le NIF, la communauté de la FCI s'est retrouvée face à la question des équations d'état des matériaux de la capsule. Comme on peut s'y attendre, l'équation d'état influe directement sur la séquence des chocs[Boehly *et al.* 2011, Robey *et al.* 2012], puisqu'elle dépend directement de la compressibilité des milieux qui composent une capsule de FCI. L'équation d'état régit également le développement des instabilités hydrodynamiques[Clark *et al.* 2010] (Fig. 3).

Par ailleurs, les progrès obtenus sur la précision des diagnostics, sur la puissance des calculateurs, et sur les avancées théoriques, ont conduit à un réexamen des équations d'état des matériaux ablateurs. Ainsi depuis les années 2010, un nombre important de publications, tant théoriques et numériques qu'expérimentales, a été consacré à cette thématique.

Depuis ma prise de fonctions au CEA, j'ai eu l'opportunité de pouvoir traiter plu-

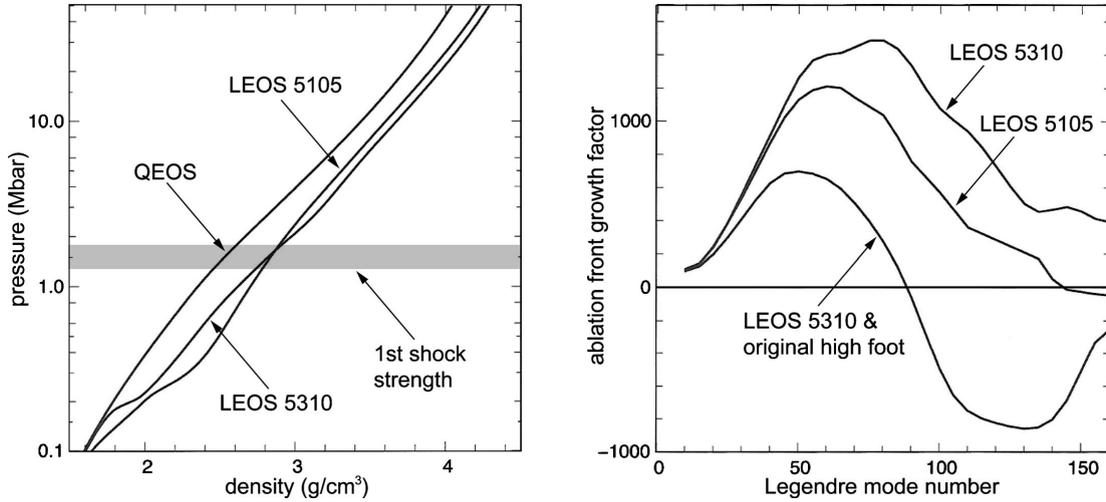


FIGURE 3 – Sensibilité du spectre des modes de déformations du front d’ablation au choix de l’équation d’état[Clark *et al.* 2010].

sieurs aspects du fonctionnement d’une cible de FCI. A mon embauche, j’ai commencé à travailler sur des expériences intégrées de physique de la cavité. Ces expériences visaient à dresser le bilan d’énergie d’une cavité d’une part[Rousseaux *et al.* 2015], et d’étudier l’hydrodynamique des parois d’autre part[Huser *et al.* 2009]. En parallèle, j’ai également mené des études concernant les instabilités hydrodynamiques, qui se sont par la suite prolongées par l’étude des équations d’état des matériaux impliqués dans ces mécanismes. Mes travaux concernant les instabilités hydrodynamiques, présentés dans le chapitre 1, ont eu pour but de valider des concepts de structuration de la couche d’ablateur des capsules. Si certaines solutions ont pu être validées, d’autres ont conduit à approfondir la question des modèles d’équation d’état utilisés pour la conception des capsules. Cet aspect plus fondamental est traité dans le chapitre 2 et a permis de montrer quelle pouvait être l’influence des propriétés ioniques des plastiques ablateurs sur la chronométrie des chocs. Dans le chapitre 3, nous poursuivons notre voyage à l’échelle microscopique et examinons les propriétés électroniques. Ces axes de recherche constituent le plan de ce mémoire et ont été menés en cherchant à être pertinent vis-à-vis de la physique d’une capsule de FCI. Les recherches les plus récentes que j’ai menées ont permis de faire évoluer les modèles d’équations d’état utilisés dans les simulations hydrodynamiques. Cependant ces modèles mis à jour sont encore incomplètement validés et leur influence sur la performance d’une capsule de FCI n’a pas encore été étudiée. La suite à donner aux travaux présentés ici sera décrite dans la conclusion de ce mémoire.

Il est impossible de disserter sur la FCI sans mentionner les très nombreux résultats obtenus par les équipes américaines sur le NIF. Quelques années auparavant, le directeur du NIF annonçait pouvoir obtenir du gain thermonucléaire pour l’année 2012.

Cependant, bien que la source laser et que la température radiative de la cavité étaient à la hauteur des spécifications, l'hydrodynamique et la production neutronique de la capsule obtenues furent en deçà des prédictions par les outils de simulation. Hurricane *et al.* [2014] mentionnent du gain thermonucléaire au niveau de l'énergie interne du combustible, mais pas au niveau de la capsule dans son ensemble. En d'autres termes, l'énergie thermonucléaire dégagée par le combustible a été supérieure à l'énergie interne acquise, mais, en se plaçant à un niveau macroscopique, l'énergie thermonucléaire dégagée par la capsule reste inférieure à l'énergie laser investie. L'objectif du gain thermonucléaire n'est donc pas encore atteint, sans doute parce qu'une approche de type plan d'expérience, primant sur l'élucidation préalable des mécanismes fondamentaux, n'a pas permis de saisir toute la complexité du fonctionnement d'une cible à gain. Suite à l'échec relatif de ces premiers tirs, un atelier international a été mis en place afin de mettre au point divers axes d'investigation permettant d'améliorer le fonctionnement des cibles à gain[NIF 2012]. Les conclusions tirées de cet atelier de réflexions sont disponible en accès libre¹ et nous sont riches d'enseignements car elles permettent de disposer d'une vue d'ensemble sur les résultats des recherches menées en FCI et de discerner les orientations de recherches à mener en priorité.

1. <http://lasers.llnl.gov>

Chapitre 1

Caractérisation et contrôle des instabilités hydrodynamiques

1.1 Les instabilités hydrodynamiques en FCI

Plusieurs types d'instabilités hydrodynamiques sont rencontrées dans une capsule de FCI au cours de son fonctionnement (Fig. 1.1). L'instabilité de Richtmyer-Meshkov (RM) se développe lors du passage d'un choc au travers d'une interface perturbée. L'instabilité de Rayleigh-Taylor (RT) a lieu à l'interface entre deux milieux de densités différentes et autour de laquelle les gradients de pression et densité sont de signes opposés. Dans le cas d'une capsule, il s'agit du front d'ablation, de l'interface ablateur-combustible et enfin de l'interface point chaud-combustible. Des instabilités de cisaillement dites de Kelvin-Helmoltz peuvent également avoir lieu à l'interface combustible cryogénique-gaz. A cela il faut ajouter des mécanismes de transmission de défauts d'une interface vers l'autre.

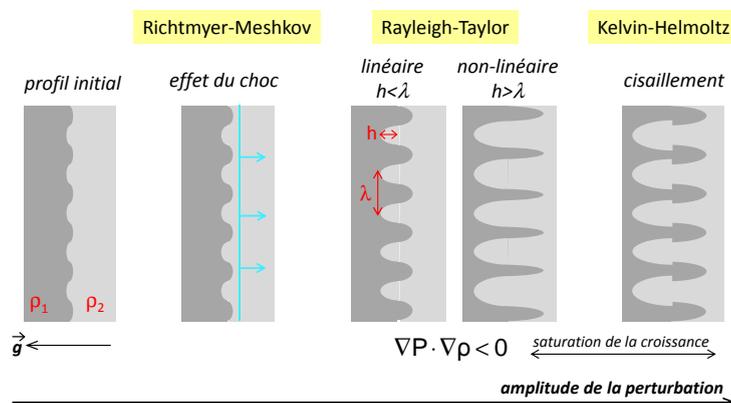


FIGURE 1.1 – Différents types d'instabilités hydrodynamiques pouvant se développer à l'interface entre deux fluides de densités différentes.

Toutes les phases de l'implosion, de par les gradients de densité et de pression impliqués, sont donc potentiellement instables (Fig. 1.2) : chacune d'entre elles est menacée par l'instabilité du front d'ablation, les instabilités RM et RT à l'interface ablateur-combustible et l'instabilité RT du point chaud, lorsque celui-ci ablate le combustible solide. Le développement des instabilités hydrodynamiques représente l'une des principales difficultés à surmonter pour assurer le fonctionnement d'une capsule de FCI. Savoir prédire et contrôler leur croissance est essentiel pour la réussite de l'allumage.

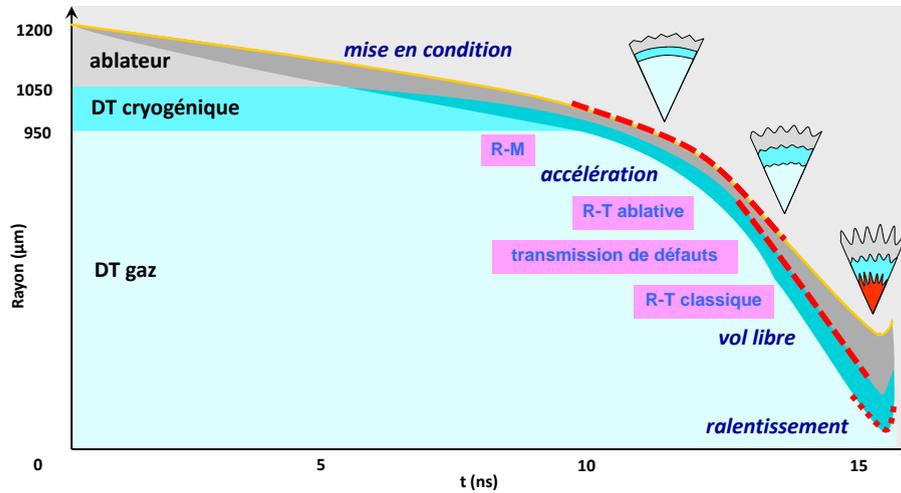


FIGURE 1.2 – Diagramme de marche simplifié décrivant l'implosion d'une capsule de FCI. Les zones en pointillés rouges décrivent les phases instables.

L'instabilité de Rayleigh-Taylor classique

L'instabilité de Rayleigh-Taylor classique est l'instabilité qui se produit lorsque de l'eau est superposée sur de l'huile, de masse volumique inférieure, dans un champ gravitationnel. Considérons deux couches de fluides séparées par une interface perturbée, de forme sinusoïdale d'amplitude initiale h_0 et de longueur d'onde λ , le fluide au dessus étant le plus lourd. En faisant un bilan des forces et en écrivant la relation fondamentale de la dynamique, on aboutit à l'équation différentielle décrivant l'évolution temporelle de l'amplitude h de la perturbation :

$$\frac{d^2 h}{dt^2} = hg(\rho_2 - \rho_1)/\lambda(\rho_2 + \rho_1),$$

dont la solution est une exponentielle

$$h = h_0 e^{\sigma t},$$

avec $\sigma = (g.k.A_t)^{1/2}$, où k est la fréquence spatiale et $A_t = (\rho_2 - \rho_1)/\lambda(\rho_2 + \rho_1)$ est le nombre d'Atwood¹. On trouve alors un taux de croissance de l'instabilité RT qui tend vers l'infini lorsque la longueur d'onde tend vers 0. Cependant, l'instabilité RT au front d'ablation est limitée par un certain nombre de phénomènes.

L'instabilité de Rayleigh-Taylor ablative

Dans le cas d'un front d'ablation il faut tenir compte du fait que la frontière instable (séparant la matière détendue de celle en aval du front d'ablation) avance vers l'intérieur de la cible. En perturbant les équations fluides, on aboutit à une relation de dispersion dont la solution dépend de l'espace et du temps :

$$h = e^{\sigma t} e^{-k|x|},$$

qui traduit que les instabilités croissent dans le temps mais décroissent dans l'espace. Le front d'ablation avance à la vitesse u_a , si bien que $|x| = u_a t$, ce qui permet d'écrire que le taux de croissance est limité par la vitesse d'ablation :

$$\sigma = (gk)^{1/2} - k u_a.$$

C'est la formule de Takabe *et al.* [1985] simplifiée. Cette description de l'instabilité du front d'ablation nous dit que la perturbation croît de manière classique autour de l'interface mais que le temps nécessaire à la croissance est réduit par l'ablation. C'est essentiellement pour cette raison qu'une vitesse d'implosion élevée est l'un des paramètres clés pour l'allumage.

La formule de Takabe *et al.* [1985] est en réalité pondérée par des coefficients numériques α et β obtenus par ajustement sur des simulations numériques bidimensionnelles :

$$\sigma = \alpha(gk)^{1/2} - \beta k u_a.$$

Betti *et al.* [1998] sont à l'origine de la théorie la plus complète qui tient compte du profil de densité ainsi que des phénomènes propres à l'interaction laser-plasma de conduction électronique et radiative. Les coefficients α et β dépendent alors du nombre de Froude $Fr = u_a^2/gL_0$, où L_0 est une longueur caractéristique du profil de densité, et de l'exposant ν utilisé dans la loi de puissance de la conduction thermique ($\kappa \sim T^\nu$). Cette formule est utilisée en attaque indirecte[Lindl *et al.* 2004] et peut s'approximer par la loi de Takabe *et al.* [1985] avec $\alpha = 0,9$ et $\beta = 2,3$. Le calcul de la courbe de dispersion est alors immédiat et l'on peut voir que l'ablation limite sensiblement la croissance de l'instabilité RT. Aux courtes longueurs d'onde, la théorie prévoit même un taux de croissance négatif, c'est à dire une diminution de la hauteur des défauts au cours du temps (Fig. 1.3). La stabilisation ablative a été démontrée expérimentalement au cours des années 90[Budil *et al.* 1996, Kilkenny *et al.* 1994] sur l'installation Nova du Lawrence Livermore National Laboratory.

1. Une description plus élaborée fait intervenir des effets d'épaisseur finie des fluides, de viscosité et de tension de surface.

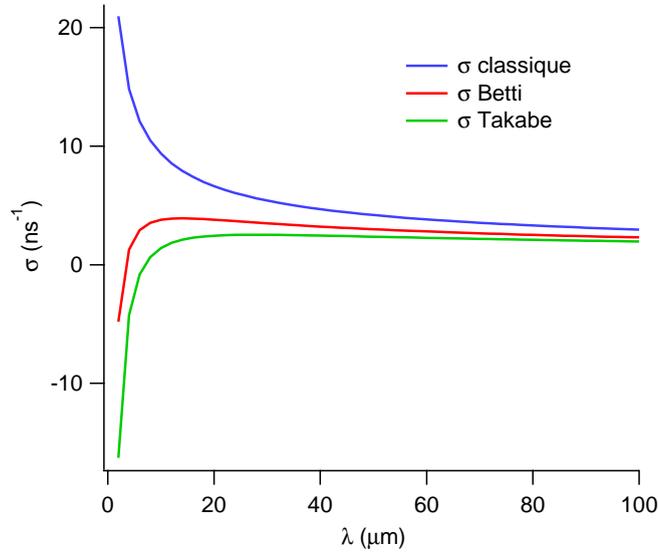


FIGURE 1.3 – Taux de croissance de l’instabilité RT de l’interface perturbée entre deux fluides. Calcul classique (bleu) et ablatif avec les formules de Takabe *et al.* [1985] (vert) et Betti *et al.* [1998] (rouge) où $g = 140\mu\text{m}\cdot\text{ns}^{-2}$ et $u_a = 3,2\mu\text{m}\cdot\text{ns}^{-1}$.

La transmission de défauts

Les chocs et ondes de raréfaction présents lors du fonctionnement d’une capsule de FCI épousent la forme des défauts initialement présents. En attaque indirecte, ces défauts proviennent des imperfections de fabrication². La transmission de ces défauts d’une interface à l’autre joue un rôle important car elle contribue aux développement des instabilités RT ablatif et classique. On distingue deux types de transmission de défauts : de l’amont vers l’aval ("feed-in") et de l’aval vers l’amont ("feed-out").

Le "feed-in" est un transport des défauts initiaux de la cible vers l’intérieur (Fig. 1.4 (a)). Le front d’ablation épouse la forme de ces défauts, ce qui se répercute sur la forme spatiale du front de choc. Lorsque ce choc déformé débouche en face arrière, l’onde de détente qui remonte vers le front d’ablation est également perturbée. Au bout d’un certain temps, cette onde de détente rencontre le front d’ablation et le déforme davantage. Par ailleurs, les déformations des lignes de vitesse conduisent localement à des effets de convergence et de divergence qui peuvent faire osciller le profil de densité de la cible.

Un front d’ablation généré au niveau d’une surface sans défaut peut également épouser des défauts qui se trouvent en aval : c’est le cas du "feed-out" (Fig. 1.4 (b)). Dans ce cas, la perturbation initiale provient de l’onde de détente lors de la transmission du choc à l’arrière de la surface. Tout comme dans le cas du "feed-in", le front d’ablation est perturbé par l’onde de détente.

2. les défauts d’éclaircissement aux petites échelles concernent les schémas d’attaque directe

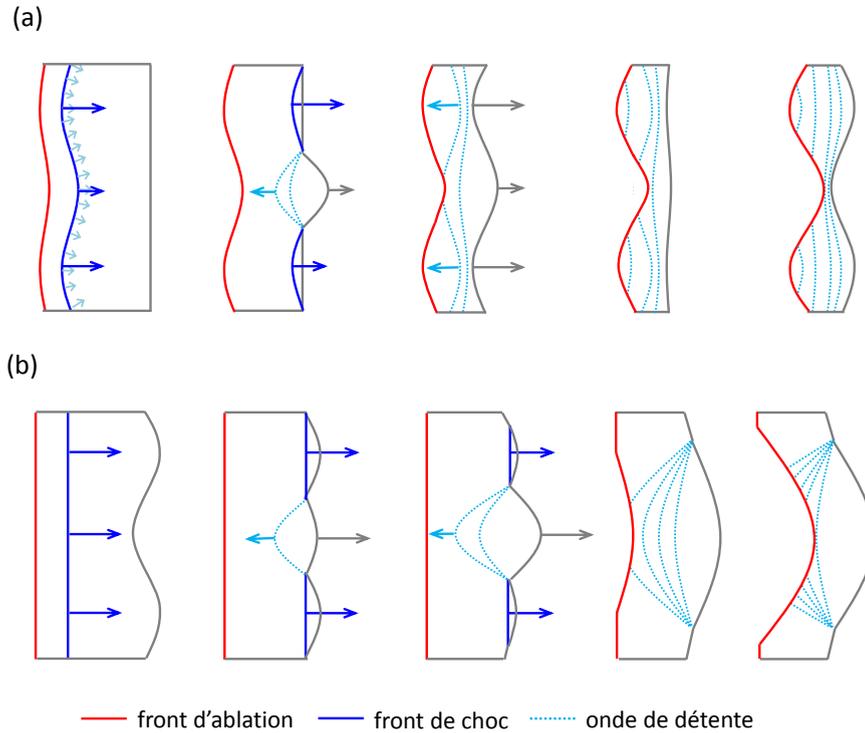


FIGURE 1.4 – Mécanismes de transmission de défauts : (a) "feed-out", (b) "feed-in".

Ces phénomènes dans des cibles planes ont été observés expérimentalement en attaque directe par Aglitskiy *et al.* [2001] et Shigemori *et al.* [2002], puis en attaque indirecte dans le cadre des premières expériences d'instabilités hydrodynamiques auxquelles j'ai participé [Casner *et al.* 2009].

Rôle du dopant dans les matériaux ablateurs d'une capsule de FCI

La nature du matériau ablateur à utiliser pour une capsule de FCI doit assurer à la fois la stabilité hydrodynamique au cours de l'implosion et l'absorption efficace du rayonnement de la cavité de conversion.

Assurer la stabilité hydrodynamique se fait en premier lieu en maximisant la vitesse d'implosion. Cela apparaît clairement dans la formule de Takabe dans laquelle le terme contenant la vitesse d'ablation est négatif. Le choix se dirige alors naturellement vers un matériau léger tel le plastique³, qui est à l'heure actuelle retenu comme matériau de référence pour la conception des capsules de FCI. Utiliser un plastique de formule C_xH_x et de densité massique proche de 1 g/cc permet d'obtenir une vitesse d'ablation élevée ainsi qu'une grande longueur caractéristique du profil de densité en amont du front d'ablation (Fig. 1.5). Un gradient faible du profil de densité assure également

3. D'autres matériaux légers comme le béryllium, le diamant ou encore l'aluminium ont été ou sont considérés comme ablateurs potentiels.

la stabilité hydrodynamique du front d'ablation. En revanche, cette solution n'est pas satisfaisante du point de vue radiatif : un matériau plastique tel le polystyrène possède un numéro atomique moyen faible de 3,5 et une opacité qui ne permet pas de protéger le combustible cryogénique du rayonnement X dur (bande M de l'or) produit par la cavité.

Une solution est de doper le plastique avec un élément de numéro atomique intermédiaire, tel Ge ou Si, pour absorber la bande M de l'or. Le taux de dopant doit être suffisamment élevé pour protéger le combustible cryogénique. Cependant, un taux de dopant trop élevé conduit à une augmentation de la densité massique du milieu, ce qui est pénalisant pour la vitesse d'ablation, et à une opacité trop élevée, ce qui raidit le front d'ablation et le rend instable. Le réglage du taux de dopant est donc déterminé par un compromis à faire entre stabilité hydrodynamique et absorption du rayonnement.

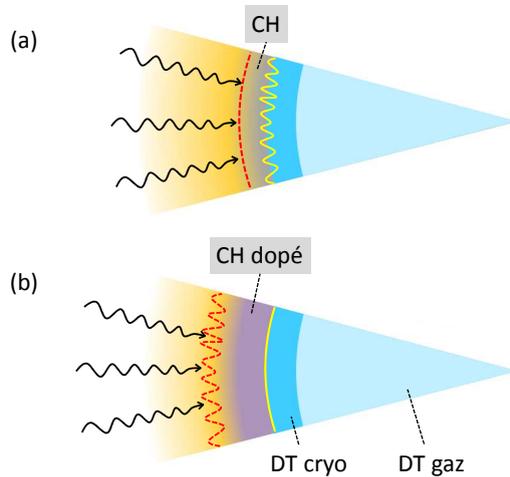


FIGURE 1.5 – Illustration du compromis à faire sur le taux de dopant. (a) Dans le cas d'un ablateur plastique non dopé, le gradient de densité est faible, ce qui conduit à un front d'ablation stable (en tirets rouges). En revanche, le rayonnement X-dur de la cavité pénètre profondément, rendant instable l'interface entre l'ablateur et le combustible (en jaune). (b) Un plastique dopé protège les couches profondes de l'ablateur du rayonnement X dur et l'interface avec le combustible est plus stable. Mais du fait de son opacité plus élevée, le gradient de densité au front d'ablation est plus raide, ce qui le rend plus instable.

1.2 Méthodes expérimentales

Les capsules de FCI sont conçues à l'aide de simulations d'hydrodynamique radiative bi- ou tridimensionnelles intégrées. Ces simulations incluent le plus de modélisation physique possible et aboutissent à des spécifications de fabrication qui permettent de

maximiser la probabilité d'allumage thermonucléaire. Pour cerner au mieux les mécanismes de croissance d'instabilités hydrodynamiques dans ces simulations, nous avons mené des expériences sur l'installation Omega à l'Université de Rochester. Pour cela il a fallu également imaginer des cibles à échelle réduite à des énergies laser plus faibles (de l'ordre de quelques kJ) et en géométrie bidimensionnelle pour pouvoir en diagnostiquer le fonctionnement.

Toutes les expériences présentées ici s'inscrivent dans la continuité d'études entamées avant mon arrivée au CEA et exploitent un savoir-faire qui s'est transmis d'un expérimentateur à son successeur sur près d'une vingtaine d'années. Ces expériences précédentes étaient principalement dédiées à la mise au point de plateformes expérimentales, à la détermination de points de fonctionnement et à la validation de schémas numériques sur des géométries de plus en plus complexes[Casner *et al.* 2009].

L'installation Omega dispose de 60 faisceaux pouvant transporter chacun 500J d'énergie laser à 3ω et permettant une irradiation sphérique (Fig. 1.6). Bien que conçue plutôt pour effectuer des expériences d'implosion en attaque directe, cette installation est particulièrement adaptée pour effectuer des expériences en attaque indirecte car les faisceaux peuvent être repointés pour irradier une cavité de conversion ainsi que des sources annexes de radiographie. Une expérience sur Omega se déroule en une journée, ce qui correspond à environ 12 tirs espacés de 45 minutes environ. Contrairement aux installations de plus petite taille sur lesquelles les expériences s'étalent sur des durées de l'ordre de la semaine au mois, une expérience sur Omega ne laisse aucune place à l'improvisation et demande une préparation très détaillée.

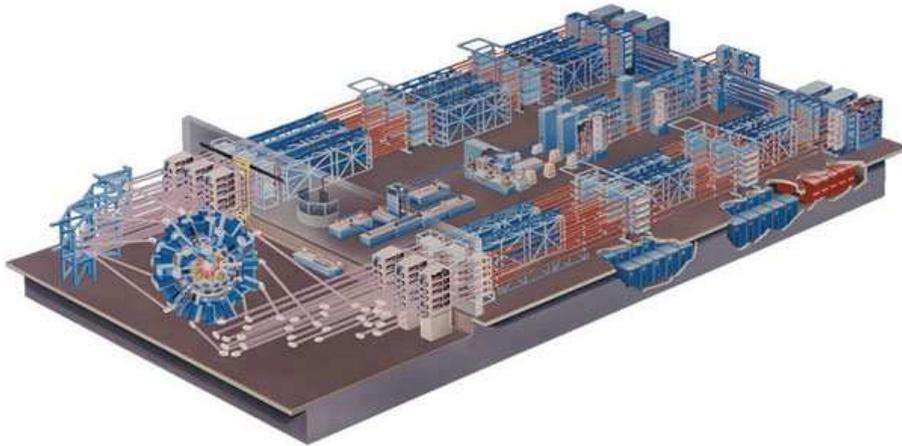


FIGURE 1.6 – L'installation Omega à l'Université de Rochester[Boehly *et al.* 1997].

Les échantillons simulés et irradiés sont typiquement des membranes de plastique épaisses de $\sim 50\mu\text{m}$ et comportent des modulations sinusoïdales d'amplitude de 1-2 μm et de longueur d'onde de 35-50 μm . La longueur d'onde des perturbations est représentative des modes de déformations les plus sensibles d'une capsule de FCI. Les membranes sont montées sur des demi-cavités ("halfraum") de conversion en or

permettant d'obtenir des températures radiatives de l'ordre de 150 eV (Fig. 1.7).

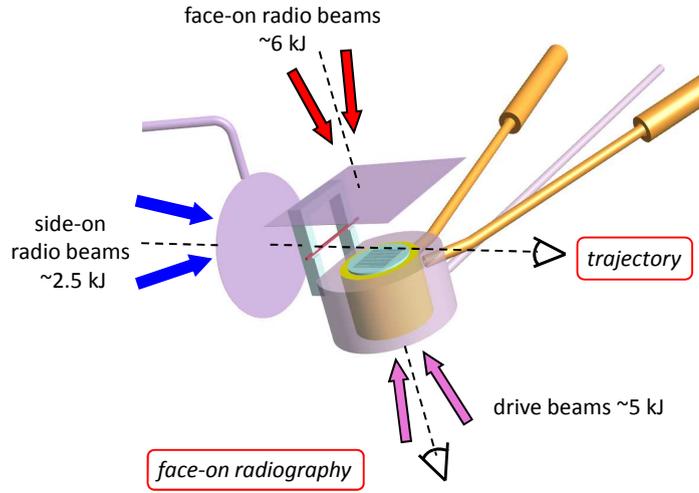


FIGURE 1.7 – Schéma d'une expérience de mesure de croissance d'instabilités hydrodynamiques en attaque indirecte. On note qu'environ 5 kJ d'énergie laser sont employés pour irradier la cavité alors que plus de 8 kJ sont dédiés aux sources de radiographie.

Lorsque la membrane est irradiée par la cavité, un choc s'y propage par effet fusée. Lorsque le choc débouche, une onde de raréfaction est réfléchiée en face arrière et rencontre le front d'ablation. C'est à partir de ce moment que ce dernier accélère et que l'ensemble de l'échantillon est mis en mouvement. Dans le cas le plus simple, les modulations sont usinées en face avant et les instabilités du front d'ablation peuvent se développer.

L'hydrodynamique de la membrane irradiée est alors mesurée par des diagnostics de radiographie transverse et longitudinale. La radiographie transverse est une ombroscopie X obtenue à l'aide d'une source annexe permettant en général de visualiser les "doigts" de Rayleigh-Taylor. La mesure du taux de croissance à partir de l'ombroscopie est possible dans les expériences dites d'astrophysique de laboratoire dans lesquelles de forts taux de croissance sont rencontrés. Cependant, dans les cas qui nous intéressent, les taux de croissance sont souvent trop faibles pour mesurer directement l'amplitude des modulations avec une bonne précision. Ce diagnostic a plutôt été utilisé pour mesurer le déplacement global de la membrane au cours du temps.

Dans les études FCI, la croissance des instabilités est en fait étudiée avec un diagnostic de radiographie axiale : les photons X produits par une seconde source de radiographie traversent l'échantillon irradié, ce qui permet de former une image de la membrane sur un détecteur. On mesure alors à différents instants la variation d'épaisseur optique entre les pics et les vallées de la membrane modulée. C'est cette observable qui est comparée aux simulations hydrodynamiques, ces dernières subissant un post-traitement permettant de simuler l'image de radiographie.

Les expériences présentées ici utilisent une plate-forme expérimentale utilisant une demi cavité cylindrique, inspirée du schéma expérimental de Bradley *et al.* [2007]. Cette

géométrie n'est pas la plus favorable en terme d'énergétique puisqu'il n'y a qu'un seul trou d'entrée laser (TEL) et la membrane d'étude est montée sur l'autre TEL. En revanche, on obtient une configuration axisymétrique, donc simulable avec un code d'hydrodynamique radiative bidimensionnel. L'énergétique de la cavité est mesurée par le spectromètre large bande (50 eV - 5 keV) Dante[Sorce *et al.* 2006] qui vise le TEL. Enfin, les cavités sont remplies de propane ou de pentane à 1 bar afin de limiter le bouchage de la cavité au cours de son irradiation.

Pour effectuer la radiographie, on utilise des feuilles métalliques minces (quelques microns d'épaisseur) irradiées par des groupes de faisceaux laser dédiés à cette fonction. Lorsque ces feuilles sont irradiées par quelques TW de puissance laser, elles sont complètement ionisées ce qui permet des transitions vers la couche K qui se manifestent par l'excitation des raies héliumoïdes émettant à des énergies de plusieurs keV. On utilise des métaux comme le scandium (4,3 keV) ou le titane (4,7 keV). D'autres éléments permettent d'obtenir des émissions plus énergétiques (par exemple, le fer à 6,3 keV ou le zinc à 9 keV), mais au prix de rendements de conversion beaucoup plus faibles. Le titane et le scandium sont utilisés car ils permettent d'avoir le meilleur compromis entre rendement de conversion X, pouvoir pénétrant et contraste mesuré.

Les images d'ombroscopie et de radiographie axiale (Fig. 1.8) sont recueillies par des caméras à image intégrales (CII) équipées de nez d'imagerie comprenant 4×4 sténopés produisant 4 images sur chacune des 4 pistes des CII. Chaque piste est balayée pendant 200 ps par une impulsion haute tension de durée 50 à 200 ps. Cette impulsion produit des photo-électrons qui sont multipliés par une galette de micro-canaux, avant d'être convertis en photons visibles par un écran de phosphore. L'image visible obtenue est ensuite enregistrée par une caméra CCD.

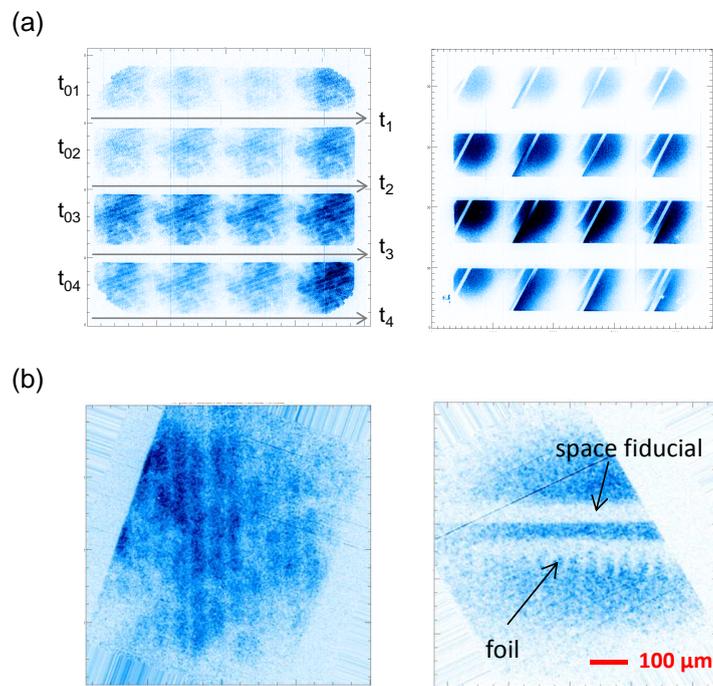


FIGURE 1.8 – (a) Images de radiographies axiale (gauche) et d’ombroscopie (droite) obtenues sur les caméras à images intégrales : chaque piste est déclenchée à un instant t_{0i} et balayée de gauche à droite le long de l’axe t_i . (b) Sous-images redressées à partir desquelles sont extraites les données. L’échelle de distance est la même pour les deux images.

1.3 Stabilisation du front d'ablation par la diffusion anisotrope

Comme nous l'avons vu dans la première section de ce chapitre, l'instabilité de Rayleigh-Taylor est réduite par l'ablation. Cette stabilisation naturelle due au déplacement du front d'ablation n'est cependant pas suffisante pour empêcher la croissance de défauts initiaux de fabrication de la cible, qui peuvent se transmettre dans les couches profondes d'une capsule au cours de son implosion [Hsing & Hoffman 1997, Shigemori *et al.* 2002], exciter l'instabilité RT classique à l'interface pousseur-combustible [Smalyuk *et al.* 2002, 2003] et également provoquer la pollution du point chaud [Regan *et al.* 2004, Wilson *et al.* 2004].

Des études théoriques menées par Sanz [1994], Goncharov *et al.* [1996] et Piriz *et al.* [1997] ont montré que le taux de croissance de l'instabilité RT ablative pouvait s'écrire :

$$\sigma = \sqrt{kg - ak^2V_a^2 + 4k^2V_a^2} - 2kV_a,$$

où g est l'accélération, k est le vecteur d'onde, a est le rapport de densité de part et d'autre du front d'ablation et V_a est la vitesse d'ablation. Le terme stabilisateur dominant est $-ak^2V_a^2$ et a été attribué à la convection du matériau ablaté [Betti *et al.* 1998, Goncharov *et al.* 1996, Gotchev *et al.* 2006] ou à la pression dynamique due à l'effet fusée par Piriz *et al.* [1997] par exemple.

Masse [2007] a montré que ce terme pouvait s'exprimer en terme de diffusion thermique transverse. Le taux de croissance σ de l'instabilité RT ablative peut alors s'écrire

$$\sigma = \sqrt{kg - a(2\sqrt{D} - 1)k^2V_a^2 + (\sqrt{D} + 1)^2k^2V_a^2} - (\sqrt{D} + 1)kV_a,$$

où $D = \kappa_x/\kappa_y$ est un nombre sans dimension égal au rapport des conductibilités thermiques dans les directions x et y , permettant d'exprimer l'anisotropie de diffusion thermique. D'après cette description théorique, l'instabilité RT ablative peut être réduite en augmentant la diffusion transverse grâce à une structure anisotrope. Cette structure peut être obtenue en utilisant une membrane feuilletée constituée d'une alternance de couches d'opacités élevées et faibles. On peut ainsi montrer que la conductivité radiative effective dans la direction transverse est supérieure à celle obtenue dans la direction longitudinale par rapport au front d'ablation. Par analogie avec un circuit électrique, cela revient à comparer la capacité effective de condensateurs en série (dans la direction longitudinale), ou en parallèle (dans la direction transverse). Masse [2007] montre alors que des simulations bidimensionnelles effectuées avec cette structuration rendaient compte de la diffusion transverse du flux de chaleur, réduisant l'instabilité du front d'ablation.

Dans une campagne de tirs menées sur l'installation Omega [Huser *et al.* 2011], nous avons validé ce concept en utilisant la plate-forme décrite précédemment. Pour cela nous avons comparé la croissance de l'instabilité RT ablative dans le cas de membranes

homogènes et feuilletées. Ces membranes étudiées étaient épaisses de $60\ \mu\text{m}$ et modulées en face avant (dirigée vers l'intérieur de la cavité de conversion). L'amplitude pic à vallée des modulations était de $1\ \mu\text{m}$ et la longueur d'onde de $50\ \mu\text{m}$. Le matériau utilisé pour les membranes homogènes était du plastique (CH) dopé à 2% de Ge. Les membranes feuilletées étaient constituées d'une alternance de couches épaisses de $1\ \mu\text{m}$ de CH non dopé et de CH dopé à 4% de Ge, afin de posséder les mêmes densité et opacité moyennes que les membranes homogènes⁴.

Le diagnostic d'ombroscopie transverse a permis de montrer que la mise en vitesse était identique pour les deux types de membranes, et donc que le feuilletage ne perturbait pas l'hydrodynamique globale. La radiographie axiale en revanche a permis de mettre en évidence une réduction de la croissance de l'instabilité RT ablative en présence du feuilletage.

Mesure de trajectoire par ombroscopie

Pour chaque image obtenue sur la CII, nous avons relevé la position absolue de la face arrière de la membrane accélérée. La figure 1.9 montre que les mesures sont en bon accord avec les simulations. Les vitesses mesurées sont comprises entre 50 et $90\ \mu\text{m}/\text{ns}$. En particulier, les trajectoires mesurées pour les deux types de membranes sont identiques, ce qui permet de s'assurer que le feuilletage ne perturbe pas l'hydrodynamique globale de la membrane et que les mesures de croissance d'instabilités se font dans les mêmes conditions.

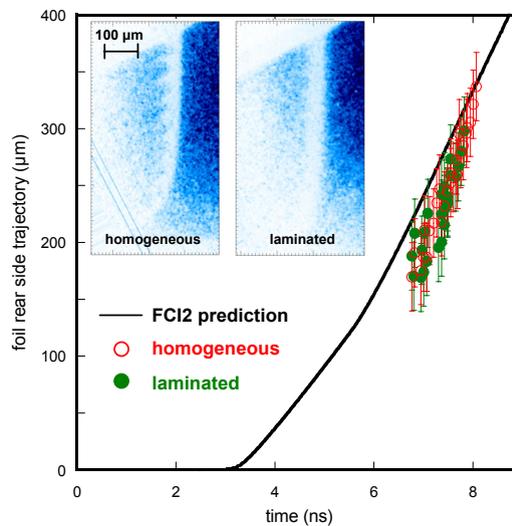


FIGURE 1.9 – Trajectoires de membranes homogènes et feuilletées par ombroscopie.

4. Dans la publication associée à cette expérience, les taux de dopants annoncés étaient 2 fois plus importants suite à une erreur de traitement des analyses de stoechiométrie de l'ablateur. Des simulations faites a posteriori par L. Masse ont montré que cette erreur sur la mesure du taux de dopant n'affectent pas les prévisions présentées ici.

Les images d'ombroscopie insérées dans la figure montrent deux clichés pris avec le même retard pour deux membranes homogènes et feuilletées. On voit clairement que les perturbations se développent dans le premier cas (atteignant des longueurs de l'ordre de la dizaine de microns), alors qu'on ne les discerne pas dans le second.

Mesure de la croissance de l'instabilité RT ablative par radiographie

Bien que la cavité de conversion soit remplie de gaz, la stagnation du plasma d'or sur l'axe est inévitable au bout de quelques ns, lorsque la croissance des instabilités commence. Il s'agit là de la principale difficulté à surmonter dans ce type d'expérience : radiographier un phénomène furtif à des temps tardifs pour lesquels le rapport signal sur bruit devient de plus en plus défavorable.

Les images brutes ont donc été filtrées afin d'améliorer le rapport signal sur bruit en utilisant la transformée par ondelettes. L'image obtenue dans l'espace réciproque contient la majeure partie de l'information dans son quadrant inférieur gauche. Les quadrants restant étaient masqués avant de faire la transformation inverse vers l'espace direct (Fig. 1.10).

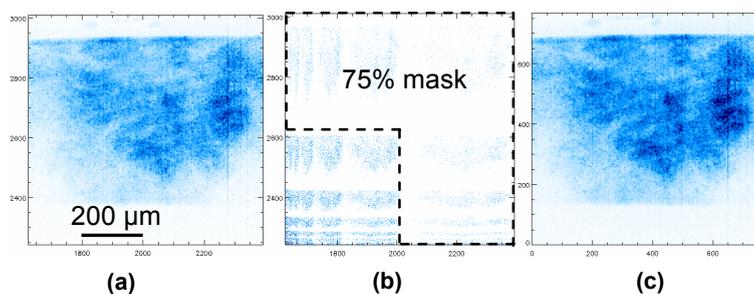


FIGURE 1.10 – Filtration par ondelettes : (a) image brute, (b) image dans l'espace réciproque, (c) image filtrée.

A partir de l'image filtrée étaient extraits les profils perpendiculaires aux modulations I et ceux-ci étaient convertis en variation de densité optique $DO = \log(\frac{I}{I_0})$, où I_0 est un profil d'intensité de référence. Ce profil de référence était obtenu en lissant le profil brut avec une largeur de $50 \mu\text{m}$ afin de gommer la longueur d'onde des perturbations. L'amplitude du mode à $50 \mu\text{m}$ était ensuite donnée par le spectre de Fourier du profil de variation de DO, corrigé par la fonction de transfert de modulation du système optique. Le spectre de bruit a été mesuré au cours d'un tir dédié au cours duquel nous avons imagé un bord franc éclairé par la source de scandium. La valeur du bruit en DO était alors de 0,02 à 0,04 selon la statistique de photons, alors que les variations de DO prévues par les radiographies simulées étaient comprises entre 0,08 et 0,13.

Les profils de variation d'intensité ont donc été prélevés sur plusieurs rectangles d'analyse de dimensions $200 \times 300 \mu\text{m}$ pour effectuer la transformée de Fourier. Pour chaque image, au moins trois spectres étaient extraits des régions ne comportant pas d'artefacts liés à la structure du plasma de cavité. L'observable pour chaque image

était donc la moyenne des amplitudes du pic à $50 \mu\text{m}$ mesuré localement. La barre d'erreur est donnée par l'écart-type de chaque série de mesure et est typiquement de $\pm 0,015$.

Mise en évidence de l'effet stabilisateur de la diffusion anisotrope

Sur la figure 1.11 est montré un exemple de comparaison entre membrane homogène et feuilletée. Les deux profils horizontaux sont pris à 8 ns après le début de l'irradiation de la cavité. Dans le cas de la membrane homogène le profil obtenu est de forme sinusoïdale avec une longueur d'onde de $50 \mu\text{m}$, alors que la membrane feuilletée ne présente que des courtes longueurs d'onde, issues principalement du bruit et de la résolution finie du système. Cette différence est frappante sur les spectres de perturbations : celui obtenu avec une membrane homogène montre clairement un pic de DO de 0.1 à $50 \mu\text{m}$, alors que celui obtenu dans le cas d'une membrane feuilletée est de 0,05.

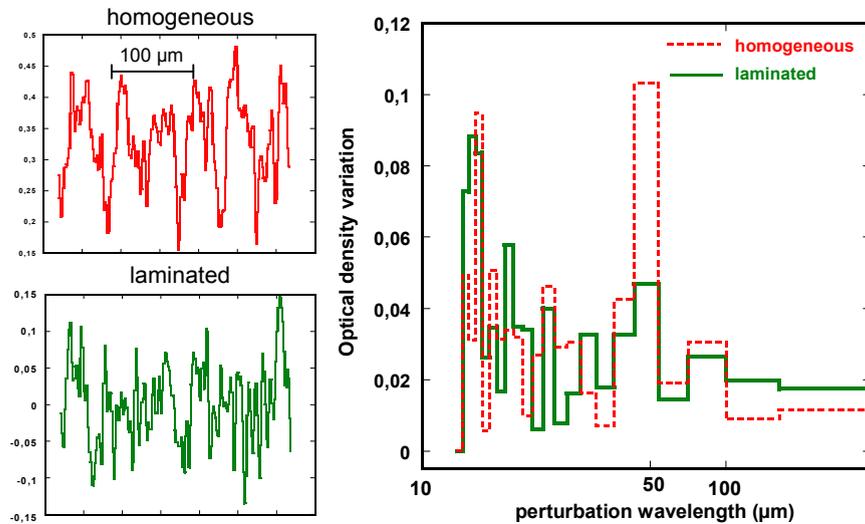


FIGURE 1.11 – Profils de variation de densité optique pour des membranes homogènes et feuilletées et spectre de perturbations correspondants.

Toutes les mesures du mode à $50 \mu\text{m}$ obtenues au cours de l'expérience sont reportées sur la figure 1.12 et comparées aux simulations. Peu de différences apparaissent pour les temps antérieurs à ~ 7 ns, mais les comportements des deux types de membranes se différencient plus clairement au-delà. La variation de densité optique pour les membranes feuilletées se stabilise autour de 0,07, alors que celle enregistrée pour les membranes homogènes dépasse 0,1. On note toutefois la présence de quelques points de données situés en dehors des prédictions, à 7 ns et à des DO de 0,12 pour les membranes feuilletées, alors qu'aucune croissance n'était prédite dans ces conditions. Il se peut cependant que ces anomalies soient dues à un artefact de mesure. En effet, rappelons que nous ne mesurons pas directement une amplitude de perturbation,

mais plutôt la variation de densité optique qui en résulte. L'observable dépend donc de la densité et de l'opacité des modulations. Par ailleurs, les pistes des CII utilisées à Omega n'ont en général pas une réponse spatialement homogène. Un problème de désadaptation d'impédance électrique au bord des pistes peut générer davantage de photo-électrons et ainsi fausser le contraste mesuré.

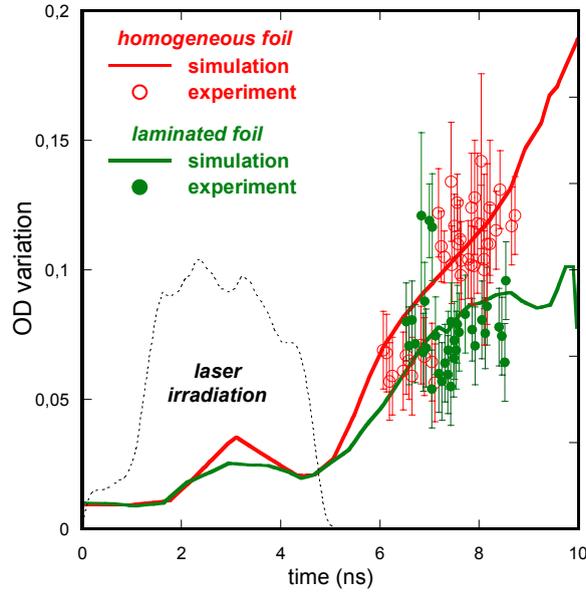


FIGURE 1.12 – Variations de densité optique au cours du temps pour des membranes homogènes et feuilletées.

La tendance générale donnée par cet ensemble de données reste tout de même très favorable aux prédictions données par les simulations. On observe clairement une stabilisation de l'instabilité RT au front d'ablation grâce à la diffusion anisotrope.

Cette expérience illustre également un certain nombre de problème à surmonter dans les expériences de mesures d'instabilités RT avec des taux de croissance relativement faibles. On est très souvent amené à travailler en limite de fonctionnement d'une installation comme Omega, car les sources de radiographie sont très gourmandes en énergie laser, plus que la cavité assurant l'irradiation de l'échantillon. Par ailleurs, les taux de croissance intéressants pour les études FCI sont relativement faibles à ces énergies laser, ce qui oblige à travailler proche des seuils de détection des diagnostics. Enfin, la chaîne de mesure dépend de l'opacité des plastiques dopés utilisés, ces derniers étant portés à des conditions thermodynamiques (quelques eV, quelques g/cc) souvent mal connues.

Si la diffusion anisotrope semble être une voie intéressante pour stabiliser le front d'ablation, il reste encore un travail de conception important à mener pour pouvoir transposer cette structuration en géométrie sphérique à l'échelle d'une capsule de FCI. En effet, pour obtenir de la diffusion anisotrope, l'épaisseur des couches alternées doit être supérieure ou égale à la hauteur des perturbations, faute de quoi le profil initial du

front d'ablation dominera. Cette condition est difficile à maintenir dans une implosion au cours de laquelle les épaisseurs des couches compactées diminuent.

1.4 Stabilisation de l'interface pousseur-combustible

L'interface pousseur-combustible sépare la couche d'ablateur du DT cryogénique solide. Elle est sujette à l'instabilité RT classique si la densité de la couche de matériau ablateur devient inférieure à celle du DT solide au cours de l'implosion. Pour maintenir une densité élevée des couches profondes de l'ablateur au contact du DT, il faut assurer une protection vis-à-vis du préchauffage généré par le rayonnement X dur de la bande M de l'or produite dans la cavité de conversion. Le préchauffage de l'ablateur au contact du DT a pour effet de le décompresser et les conditions sont alors propices au développement de l'instabilité RT classique.

Capsules à gradient de dopant

Dans la section 1.1, nous avons vu qu'un plastique dopé était une solution intéressante pour obtenir une implosion performante et stable, tout en protégeant les couches profondes de l'ablateur et du combustible solide. Des conceptions de capsules plus complexes utilisant des couches d'ablateur avec des taux de dopant variant en fonction du rayon ont été publiées par des groupes américains[Dittrich *et al.* 1998, Haan *et al.* 2005], et sont utilisées dans les expériences ayant lieu sur le NIF depuis un certain nombre d'années[Clark *et al.* 2010, Hammel *et al.* 2011]. Le CEA a également développé des capsules similaires dans le cadre du programme Laser Mégajoule[Cherfils-Clérouin *et al.* 2009]. Ces capsules dites à gradient de dopant sont constituées d'une couche externe de plastique non dopé (d'épaisseur 100 μm environ), puis d'une succession de fines couches (quelques microns) d'ablateur dopé (fig 1.13). Le long de la direction radiale, le taux de dopant augmente puis diminue, définissant un gradient "externe" et un gradient "interne". Enfin la dernière couche en contact avec l'ablateur est une couche non dopée.

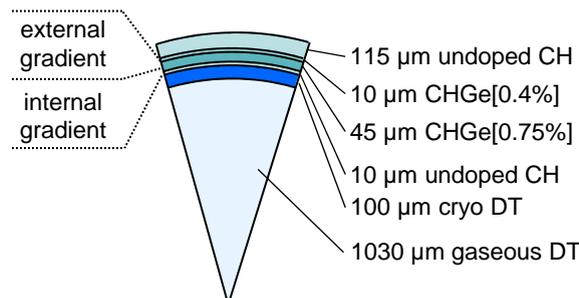


FIGURE 1.13 – Structure d'une capsule de FCI pour le Laser Mégajoule.

La couche externe de la capsule n'est pas dopée afin de maximiser la vitesse d'implosion et la stabilisation ablative du front d'ablation. Lorsque le front d'ablation se rapproche du combustible lors de la phase d'accélération, le gradient externe permet de limiter le raidissement du front d'ablation avant d'atteindre la couche la plus dopée. La partie de l'ablateur entre cette couche la plus dopée et le combustible est le gradient interne. Les couches dopées absorbent le rayonnement X-dur : leur expansion thermique, associée aux effets de convergence permet de comprimer par pincement la dernière couche d'ablateur non dopée. On espère ainsi maximiser la densité de l'ablateur au contact du DT solide et stabiliser l'interface pousseur-combustible.

Transposition à l'échelle d'Omega

Démontrer l'efficacité du gradient de dopant dans une expérience d'implosion à grande échelle n'est pas chose évidente, tant sont nombreux les phénomènes couplés intervenant au cours du fonctionnement de la cible et les artefacts nécessaires pour restituer les observables de l'expérience (masse surfacique, production neutronique...) par les simulations. C'est pourquoi nous avons commencé à nous intéresser à la démonstration de cet effet à échelle réduite sur l'installation Omega.

Pour cela, des dimensionnements ont été effectués à l'aide du code FCI2 au CEA. Sur la figure 1.14, nous montrons un exemple de cible conçue pour fonctionner sur l'installation Omega et cherchant à reproduire l'effet du gradient interne. Cette membrane est constituée de 41,5 μm de plastique (CH) dopé à 2,5% de Ge, 5 μm de CH non dopé, puis 10 μm de CH dopé à 13% représentant le combustible. Cette membrane est intégrée à la même plate-forme expérimentale que celle utilisée pour l'étude de l'instabilité du front d'ablation dans la section 1.3.

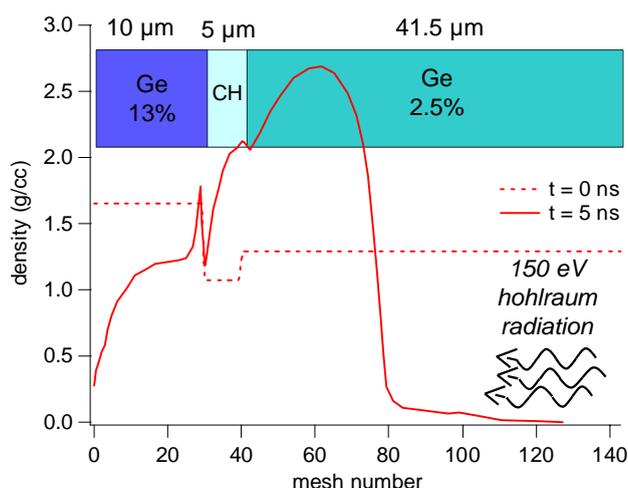


FIGURE 1.14 – Simulation du profil de densité obtenu dans une cible à gradient de dopant fonctionnant à échelle réduite.

Les simulations effectuées avec cette structure prévoyaient la stabilité de l'interface

CH/CHGe(13%), permettant ainsi de reproduire le gradient interne d'une capsule de FCI à échelle réduite. Cependant, cette conception s'est avérée être trop sensible aux variations technologiques. Les écarts entre spécifications et les mesures faites sur les membranes fabriquées, bien que faibles (de l'ordre du micron sur les épaisseurs et de l'ordre du % sur les taux de dopants) suffisaient à changer très sensiblement les résultats des simulations (Fig. 1.15). Les quelques mesures obtenues sont en assez bon accord avec les simulations tenant compte des caractéristiques réelles des cibles, mais se distinguent à peine du bruit si bien que cet accord peut paraître fortuit. De plus, elles ne permettent pas de démontrer l'efficacité du gradient de dopant par rapport à une géométrie sans gradient.

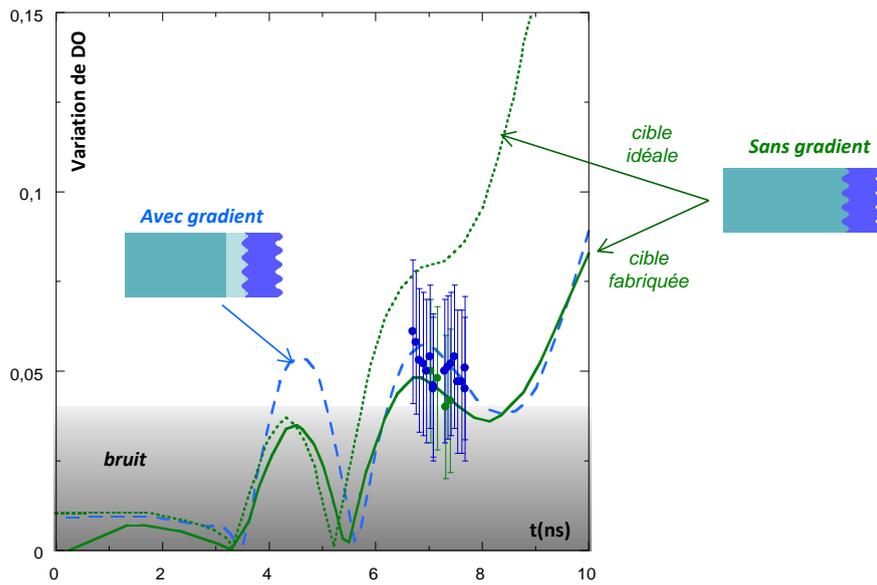


FIGURE 1.15 – Simulation du profil de densité obtenu dans une cible à gradient de dopant fonctionnant à échelle réduite.

Ensuite, il est important de signaler que les prévisions effectuées sur les cibles à gradient de dopant dépendent d'un grand nombre de paramètres encore mal maîtrisés comme la chronométrie des chocs et l'absorption de la bande M de l'or par les différentes couches de plastiques. Une modélisation pertinente de ces phénomènes requiert une connaissance précise des opacités et équations d'état le long des courbes d'Hugoniot et sur les isentropes de détente chaudes. Les densités et températures atteintes font partie du domaine des plasmas denses, parfois désigné "Warm dense matter" (WDM) : l'examen des conditions thermodynamiques obtenues aux différentes interfaces dans les simulations montrent que la densité est comprise entre ρ_0 et $3\rho_0$, tandis que les températures sont de l'ordre de 1 à 20 eV.

De nombreuses variations ont donc été faites dans les simulations afin de déterminer quels sont les paramètres clés intervenant dans le fonctionnement du gradient de dopant. L'un d'entre eux est la connaissance des équations d'état. Sur la figure

1.16, deux calculs de croissance d'instabilité RT pour une cible à gradient de dopant sont effectués avec deux modèles d'équations d'état différents montrent des déformations d'interfaces très différentes. Ces nombreuses questions soulevées par l'étude du gradient de dopant et des capsules de FCI nous a amené à questionner les modèles existants et à initier un programme de recherches plus fondamentales sur les équations d'état et les propriétés microscopiques des matériaux ablateurs.

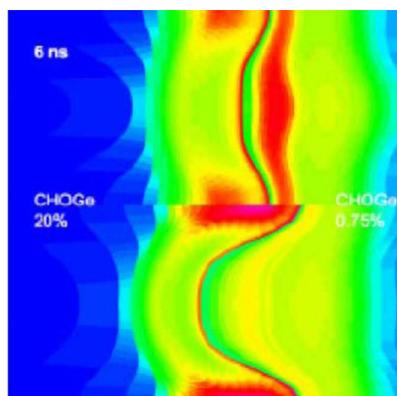


FIGURE 1.16 – Simulations d'une structure à gradient de dopant utilisant deux jeux d'équations d'état différents.

1.5 Limitation de la technique de radiographie axiale

La radiographie de face exposée dans ce chapitre est la technique la plus couramment utilisée pour qualifier le développement des IHD, puisque l'ombroscopie latérale n'est en général pas assez précise pour mesurer des taux de croissance.

Dans le cadre d'une étude sur l'influence du taux de dopant sur la croissance des IHD, nous avons observé la croissance de membranes de plastique dopé au germanium avec des proportions atomiques allant de 1,6 à 13 % [Huser & Casner 2010]. Toutes ces membranes ont été irradiées dans les mêmes conditions, qui sont celles décrites dans les sections précédentes, obtenues sur l'installation Omega. La figure 1.17 montre que, malgré les fortes différences dans les taux de dopant, les variations de densité optique diffèrent peu selon le type de membrane. Les prédictions par la simulation quant à elles prédisent d'importantes différences pour des temps postérieurs à 6 ns après le début de l'irradiation.

Les quelques images d'ombroscopie obtenues au cours de cette expérience montrent pourtant des différences importantes (Fig. 1.18) au niveau de la longueur des doigts de Rayleigh-Taylor. On se trouve donc dans un cas de figure où l'effet de la longueur des doigts de Rayleigh-Taylor est compensé par celui de l'opacité du matériau sondé par le diagnostic.

Ces travers de la technique de radiographie axiale soulèvent la question de l'opacité des matériaux ablateurs dans les conditions obtenues sur Omega, qui sont typiquement

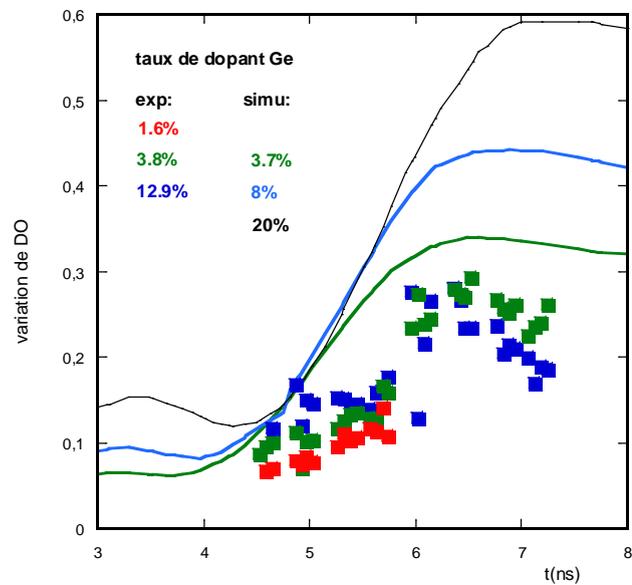


FIGURE 1.17 – Variation de densité optique dans le cas de membranes dopées au germanium avec des taux de dopants différents. Les taux de dopant utilisés dans l’expérience diffèrent de ceux des prédictions suite à la réanalyse de la composition chimique du plastique dopé au germanium évoquée dans (1.3).

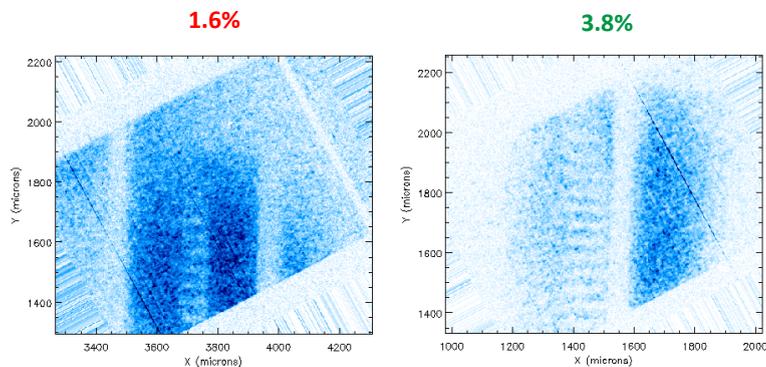


FIGURE 1.18 – Images d’ombroscopie montrant des croissances d’instabilités différentes selon le taux de dopant des membranes considérées.

des températures de l’ordre de la dizaine d’eV et des densités proches de la densité normale. C’est dans le but de progresser sur ces questions que nous examinerons les propriétés électroniques des ablateurs dans le troisième chapitre de ce document.

Chapitre 2

Equation d'état et dissociation

Le chapitre précédent a soulevé la question du rôle des équations d'état dans le fonctionnement des cibles à gradient de dopant à l'échelle réduite d'Omega. C'est ce qui a initié les premières expériences menées sur l'équation d'état du plastique dopé au germanium, reprenant les matériaux utilisés dans les expériences sur Omega. Ces expériences, effectuées en collaboration avec Norimasa Ozaki à l'Université d'Osaka, avaient pour but initial d'estimer l'ionisation moyenne de ces matériaux le long de leur Hugoniot principale. Je tenais alors cette dernière comme principale responsable des difficultés rencontrées au cours des expériences sur le gradient de dopant. J'ai donc ensuite cherché à progresser dans la description des propriétés électroniques à l'aide de simulations de dynamique moléculaire quantique *ab initio* effectuées avec Vanina Recoules au CEA de Bruyères-le-Châtel.

La première étape de ces calculs était de simuler les états thermodynamiques atteints en utilisant les densités et températures mesurées expérimentalement, avant d'effectuer des calculs dédiés à la structure électronique. C'est au cours de cette première étape que nous avons pris conscience de l'influence de la dissociation des liaisons atomiques sur la compressibilité des états obtenus par choc. Dès lors, alors que nous tenions la connaissance de la courbe d'Hugoniot pour acquise, le chemin vers la compréhension des propriétés électroniques s'annonçait un peu plus long que prévu.

C'est à ce moment qu'il est apparu intéressant d'appliquer ces études aux capsules de FCI en général, et d'accroître la force de travail en recrutant Pierre Colin-Lalu dans le cadre d'une thèse de doctorat. En parallèle, des expériences menées sur le NIF montraient que le plastique dopé au silicium absorbait le rayonnement de la cavité plus efficacement que celui dopé au germanium, conduisant à des vitesses d'implosion plus élevées. J'ai donc mis en place des programmes expérimentaux sur le plastique non dopé (qui constitue les couches externe des capsules de FCI) et sur le plastique dopé au silicium (utilisé comme gradient de dopant près de l'interface pousseur-combustible). Les expériences sur le plastique non dopé se sont déroulées au Laboratoire pour l'Utilisation des Lasers Intenses (LULI) de l'École Polytechnique à Palaiseau, et celles sur le plastique dopé au silicium à l'Université d'Osaka dans la continuité des premières expériences sur le plastique dopé au germanium. Un changement dans la méthode

d'investigation de ces matériaux a également été opéré en utilisant systématiquement la simulation *ab initio* pour prédire les expériences et se comparer aux modèles d'équation d'état disponibles. Cette méthode de travail a permis de mettre en évidence des caractéristiques communes aux différents matériaux étudiés et d'inclure l'effet de la dissociation dans les modèles d'équation d'état utilisés dans les codes de simulation hydrodynamique.

Après une brève description des matériaux ablateurs dans le contexte de la FCI, nous examinerons leurs propriétés structurales, en mettant l'accent sur la dissociation et son effet sur les courbes d'Hugoniot. Nous montrerons ensuite comment celle-ci peut être intégrée dans un modèle d'équation d'état et discuterons des conséquences attendues sur le fonctionnement d'une capsule de FCI.

2.1 Contexte d'utilisation en FCI

Chemin thermodynamique

La figure 2.1 donne un aperçu des conditions thermodynamiques qu'il faut connaître pour maîtriser le fonctionnement d'une capsule de FCI. En ce qui concerne l'ablateur, cette région du diagramme de phase coïncide avec la dite "Warm Dense Matter" (WDM) ($T \sim 1-100$ eV, $\rho \sim 0,01-10\rho_0$). Les trajectoires montrées dans cette figure correspondent à la séquence des chocs décrite dans l'introduction de ce manuscrit, mais la connaissance des états détendus est également extrêmement importante car elle intervient dans les propriétés d'absorption du rayonnement de la cavité par la capsule.

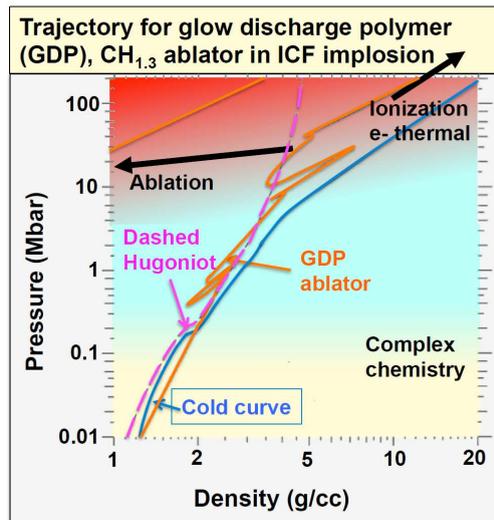


FIGURE 2.1 – Chemin thermodynamique suivi par l'ablateur en plastique au cours de l'implosion d'une capsule de FCI[NIF 2012].

Composition chimique et structure

Pour décrire le fonctionnement d'une capsule de FCI, une connaissance précise des propriétés des matériaux est nécessaire. La majorité des études menées sur les matériaux plastiques dans le régime WDM concerne des matériaux idéalisés qui diffèrent de ceux utilisés dans les capsules de FCI. Cauble *et al.* [1997], Koenig *et al.* [2003], Ozaki *et al.* [2009] et Barrios *et al.* [2010] ont effectué des expériences sur le polystyrène et le polyéthylène commercial. Les études théoriques à l'aide de calculs de dynamique moléculaire quantique le long d'isochores [Lambert & Recoules 2012, Knyazev & Levashov 2015], de l'Hugoniot [Wang *et al.* 2011, Hu *et al.* 2014a] ou étendues à des régions du diagramme de phase [Hamel *et al.* 2012, Danel & Kazandjian 2015, Hu *et al.* 2015] concernent également des matériaux plastiques idéalisés.

Il n'est cependant pas possible de fabriquer des capsules sphériques avec des polymères du commerce. En pratique, le matériau ablateur plastique est déposé sur un mandrin de PAMS par polymérisation plasma en décharge lumineuse (glow discharge polymerization - GDP). On emploiera dans ce qui suit le terme CH-GDP pour désigner le plastique fabriqué par ce procédé. La structure du CH-GDP est amorphe (le terme polymère est donc galvaudé). Des mesures de diffraction X effectuées sur synchrotron ont confirmé cette absence de structure [Plisson *et al.* 2016].

De plus, des analyses croisées par RBS (Rutherford Backscattering Spectroscopy) et par spectroscopie infrarouge sous pyrolyse en atmosphère d'azote, conduites par le Service microcibles du CEA, ont montré que l'oxygène présent dans l'humidité de l'air se fixe dans le substrat et cette proportion d'oxygène était de 3% en fraction atomique dans le CH-GDP non dopé. Enfin, des analyses en spectrométrie infrarouge ont montré l'existence de liaisons C-O, démontrant que l'oxygène n'est pas juste adsorbé en surface, mais entre dans la composition chimique du matériau. Nos collègues américains utilisant également du CH-GDP trouvent que cette proportion peut atteindre 5% [Huang *et al.* 2013]. Lorsqu'on veut doper le CH-GDP, une injection de gaz auxiliaire de gaz est utilisée au cours du procédé de polymérisation plasma. En présence d'un dopant, les analyses RBS montrent que la proportion d'oxygène atteint alors jusqu'à 9%. Les plastiques utilisés dans les capsules de FCI diffèrent donc du polystyrène équimolaire couramment utilisé dans les simulations hydrodynamiques, ce qui a motivé à générer des équations d'état dédiées à ces matériaux.

Modèles d'équations d'état

Les équations d'état des matériaux utilisés dans les simulations d'hydrodynamique radiative sont issues de l'assemblage de plusieurs modèles puis tabulées sur une grille de densité et de température. Les modèles les plus couramment utilisés sont SESAME [1992] et QEOS [More *et al.* 1988]. Ces modèles considèrent un atome moyen et sont basés sur l'hypothèse que l'énergie libre de Helmholtz peut se décomposer en contributions ioniques et électroniques.

Le modèle SESAME [1992] développé au Los Alamos National Laboratory contient un certain nombre de paramètres qui sont ajustés sur des données expérimentales de

courbes d'Hugoniot. Il est disponible sous la forme d'une base de données et n'est pas modifiable. Le modèle QEOS est quant à lui entièrement analytique et, dans sa forme simplifiée, ne dépend que des grandeurs atomiques A et Z . Les plastiques utilisés dans les capsules de FCI étant des mélanges complexes de C, H, O et du dopant Ge ou Si, ce modèle est particulièrement intéressant pour en calculer l'équation d'état.

Dans la région WDM, La partie ionique du modèle QEOS utilise un modèle de Cowan, basé sur une équation d'état de Mie-Grüneisen, un modèle de Debye solide et une loi de Lindemann pour décrire la courbe de fusion. La partie fluide est une équation d'état de type gaz parfait modifiée par des coefficients qui dépendent entre autre du paramètre de Grüneisen. La composante électronique est donnée par la théorie de Thomas-Fermi (TF) qui est paramétrée par A et Z . Cependant la description TF des électrons aboutit à une pression électronique de l'ordre du Mbar lorsqu'on extrapole aux conditions normales. Pour retrouver les propriétés normales, une correction de liaison chimique[Barnes 1967] est appliquée. Dans les équations d'état tabulées, cette correction qui permet de déterminer la courbe froide est comprise dans la composante électronique. La figure 2.2 montre un exemple d'assemblage de différents modèles pour les parties ioniques et électroniques de l'équation d'état QEOS pour l'aluminium.

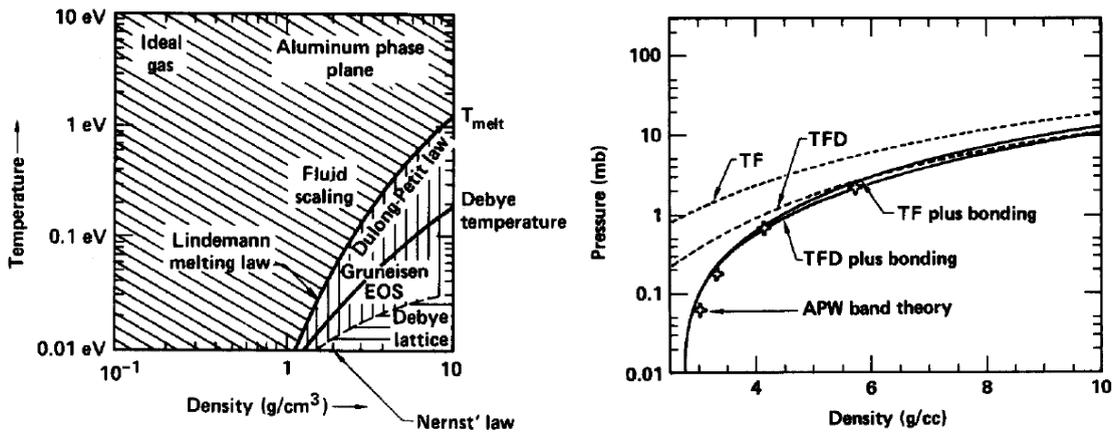


FIGURE 2.2 – Composantes ionique (gauche) et électronique (droite) de l'équation d'état de l'aluminium. Figures extraites de [More *et al.* 1988].

Nous avons testé le modèle QEOS ainsi que des formes modifiées. L'une d'entre elles est le modèle QEOS-Yukawa, dans lequel la composante ionique de la partie fluide est décrite avec un potentiel de Yukawa[Gilles *et al.* 2007]. Cette modification améliore la transition vers la limite gaz parfait et permet de mieux décrire les phénomènes d'écrantage à haute température. La continuité de ce modèle est le modèle semi-empirique QSEM. Il s'agit d'un modèle générique qui dans sa forme la plus simple reprend QEOS-Yukawa, mais avec un traitement quantique des électrons obtenu à l'aide de l'option Inferno[Liberman 1982] du code VAAQP (Variational Average Atom in Quantum Plasma) de Piron & Blenski [2011]. C'est au sein de QSEM que nous incluons le traitement de la dissociation.

Ces modèles d'équations d'état sont couramment utilisés dans les codes de simulations hydrodynamiques car ils permettent une description cohérente des états thermodynamiques sur plusieurs ordres de grandeurs en densité et température. Cependant, ils pâtissent d'un certain nombre d'approximations lorsqu'on sort du domaine de validité de la théorie Thomas-Fermi, c'est à dire pour les solides et les plasmas denses. En effet, dans cette région les effets quantiques deviennent importants, mettant en défaut le modèle d'atome moyen (qui n'inclut pas de description de la structure ionique) et la description Thomas-Fermi des électrons (qui surestime la pression électronique).

2.2 Méthodes expérimentales et numériques

2.2.1 Mesure de l'Hugoniot par désadaptation d'impédance

Pour tester les modèles d'équations d'état, nous avons mesuré des courbes d'Hugoniot qui représentent l'ensemble des états atteints lors d'une compression par choc. Des chocs à des pressions de l'ordre du Mbar ont été obtenus au cours d'expériences en géométrie plane et en attaque directe sur les installations LULI à l'école Polytechnique et Gekko à l'Université d'Osaka. Les cibles étaient constituées d'un ablateur en plastique commercial, d'un poussoir métallique puis d'un matériau de référence et enfin de l'échantillon de plastique en face arrière. Les chocs générés dans les plastiques étudiés étaient suffisamment forts pour ioniser la matière et être réfléchissants. Les températures atteintes, de l'ordre de l'eV, permettaient également au front de choc de produire du rayonnement visible. Les caractéristiques des chocs propagés (vitesse, réflectivité, émission propre) pouvaient alors être mesurées avec les diagnostics d'interférométrie VISAR[Celliers *et al.* 2004a] et de pyrométrie optique SOP[Miller *et al.* 2007], couramment utilisés dans les expériences de mesures d'équation d'état par choc.

Les mesures de courbes d'Hugoniot dans le plan pression-densité ont été obtenues par la méthode de désadaptation d'impédance. Cette méthode repose sur la caractérisation de la transmission d'un choc d'un matériau de référence (l'aluminium ou le quartz) vers le matériau d'étude. En mesurant les vitesses de choc de part et d'autre de l'interface qui sépare le matériau de référence du matériau d'étude, on accède à la pression et à la densité sous choc en utilisant les relations de conservation d'Hugoniot-Rankine.

Un exemple de mesure obtenue par désadaptation d'impédance est donné sur la figure 2.3. Dans cet exemple, le matériau de référence est le quartz et on cherche à mesurer l'équation d'état du CHOGe dopé à 2,5%. Au cours de l'expérience, une onde de choc est transmise du quartz vers le CHOGe et on accède aux vitesses de choc dans les deux matériaux U_s^{Qz} et U_s^{CHOGe} . Connaissant les densités initiales des milieux, on peut alors tracer les droites de Rayleigh $P = \rho_0 U_s u_p$ dans le plan pression-vitesse fluide. L'état thermodynamique atteint dans le quartz est alors donné par l'intersection de sa droite de Rayleigh et de son Hugoniot considérée comme connue.

Le choc est transmis dans le CHOGe, d'impédance de choc plus faible. L'état obtenu dans le CHOGe est alors déterminé par l'intersection de sa droite de Rayleigh et de la

courbe de détente isentropique du quartz. Cette dernière est calculée analytiquement à l'aide du coefficient de Mie-Grüneisen $\Gamma = V(\frac{\partial P_{th}}{\partial E_{th}})_V$, où P_{th} et E_{th} sont les composantes thermiques de la pression et de l'énergie. Dans la plupart des cas, les pressions et températures obtenues expérimentalement sont telles que le matériau de référence peut être considéré comme un liquide simple et le coefficient de Grüneisen prend sa valeur limite $2/3$. Un modèle plus évolué proposé par Knudson & Desjarlais [2013] (pour le quartz) et Knudson & Desjarlais [2015] (pour l'aluminium) se base sur des simulations *ab initio* et des résultats expérimentaux obtenus sur la machine Z pour aboutir à un coefficient de Grüneisen effectif qui dépend de la vitesse de choc ou de la vitesse fluide.

Dans toutes les méthodes énoncées ci-dessus, l'Hugoniot de la référence est décrite analytiquement et son isentrope est obtenue par un calcul récursif. Cela permet donc de propager les erreurs facilement et de traiter un grand nombre de données expérimentales en un seul lot. La source d'erreur dominante est l'erreur de mesure sur la vitesse de choc, de l'ordre du pourcent. Les autres sources d'erreurs proviennent des incertitudes sur les paramètres qui entrent dans la modélisation de l'équation d'état de la référence ainsi que d'artefacts expérimentaux. A partir de la connaissance de l'état (P, u_p) dans le matériau d'étude et de la vitesse de choc U_s , on obtient la densité ρ grâce aux relations de conservation de Hugoniot-Rankine par $\rho = \rho_0 U_s / (U_s - u_p)$. On aboutit ainsi en général à des erreurs de 2-3% sur la pression et 5-10% sur la densité.

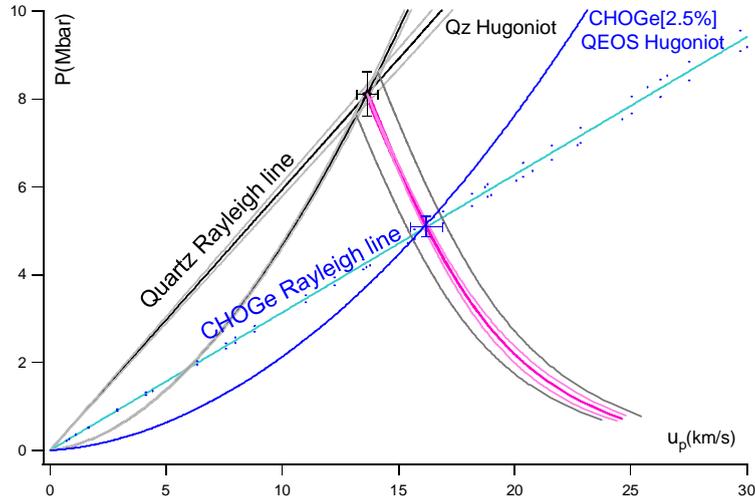


FIGURE 2.3 – Détermination d'un point d'Hugoniot par la méthode désadaptation d'impédance.

Utilisation de la référence quartz

Le quartz a fait l'objet d'études récentes et son équation d'état à fait l'objet de controverses entre les laboratoires nationaux américains Livermore et Sandia qui ont

étudié l'Hugoniot principale du quartz en utilisant des tirs laser[Hicks *et al.* 2006, Hamel *et al.* 2012] ou sur machine Z[Knudson & Desjarlais 2009, 2013]. Ces évolutions de l'équation d'état du quartz ont alors conduit à de nombreuses réanalyses de données d'Hugoniot, aussi bien dans le cadre des travaux présentés ici que dans d'autres études sur les plastiques, l'hydrogène et l'hélium. Ces réanalyses successives ont eu peu d'influence sur les pressions mais ont eu des conséquences plus importantes sur les densités mesurées. Nous reviendrons sur ce point à la fin de ce chapitre.

Le quartz est couramment utilisé dans des expériences de désadaptation d'impédance faisant intervenir des matériaux transparents (plastiques, hydrogène[Hicks *et al.* 2009], hélium[Celliers *et al.* 2010], eau[Celliers *et al.* 2004b] ...), puisque la transmission du choc peut être suivie avec un diagnostic VISAR, ce qui permet de calculer la désadaptation d'impédance avec une bonne précision. De plus, la transparence des milieux permet d'utiliser le quartz comme référence de réflectivité et de température. En calibrant l'émission propre I_{Qz} et la réflectivité du quartz R_{Qz} en fonction de la vitesse de choc, on accède alors aisément à ces quantités dans le matériau d'étude. La figure 2.4 montre un exemple de jeu de données obtenu dans le plastique dopé au germanium à partir d'une référence quartz.

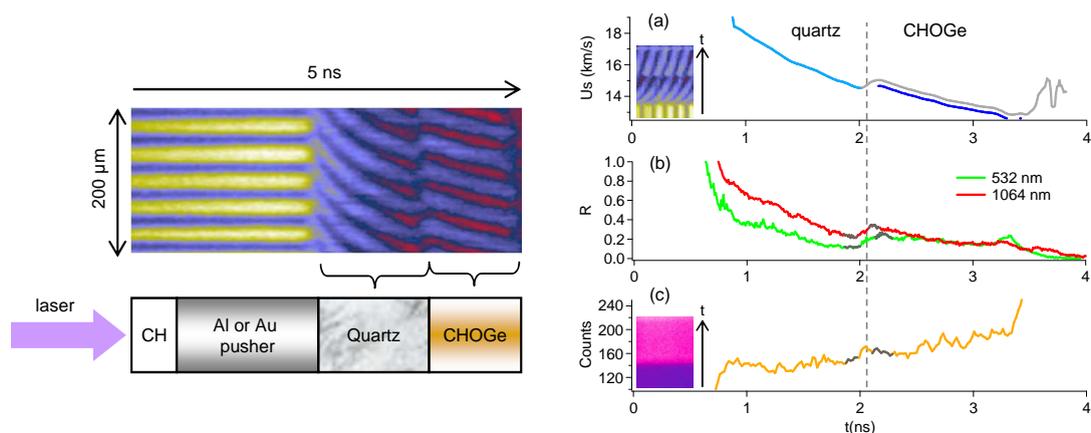


FIGURE 2.4 – Image VISAR typique et géométrie de cible (gauche), mesures de vitesse, réflectivités et émission propre à l'interface quartz-CHOGe (droite).

Utilisation de la référence aluminium

L'Hugoniot principale de l'aluminium a été mesurée dans de nombreuses expériences avec des canons à gaz, des explosifs, des lasers, et des explosions nucléaires souterraines. Ces données ont été compilées par Hicks *et al.* [2005]. L'aluminium est cependant opaque et on ne peut pas faire de mesures directement au niveau du front de choc. Seule la vitesse de choc moyenne est accessible en effectuant des mesures de temps de transit dans des marches, et il reste à évaluer la stationnarité pour accéder à la vitesse instantanée. Une référence en aluminium a été utilisée pour mesurer l'équa-

tion d'état du CH-GDP (Fig. 2.5), car celui-ci étant très absorbant, l'utilisation du quartz en tant que référence paraissait trop risquée pour garantir une mesure.

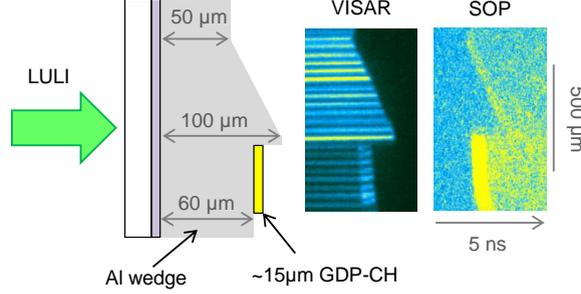


FIGURE 2.5 – Images expérimentales obtenues avec une cible utilisant une référence en aluminium. La marche d'aluminium est usinée en forme de coin afin d'évaluer la stationnarité du choc.

Les mesures de réflectivité et de température se font de manière absolue : la réflectivité du front de choc est déterminée par rapport à une valeur de référence, et la température par la mesure photométrique de l'émission propre. Dans les deux cas, ces grandeurs sont corrigées des éventuels phénomènes d'absorption.

2.2.2 Calcul de l'Hugoniot par la simulation *ab initio*

Les expériences menées sur les matériaux ablateurs ont bénéficié de la modélisation des états obtenus par la dynamique moléculaire quantique (Quantum Molecular Dynamics - QMD), qui est à ce jour l'outil théorique le plus performant pour décrire les plasmas denses. Les simulations de dynamique moléculaire quantique décrivent la matière sans paramètre extérieur (d'où leur appellation *ab initio*). Le principe général est de considérer une boîte de simulation dans laquelle est résolue l'équation de Schrödinger.

L'approximation de Born-Oppenheimer

Modéliser la matière à l'échelle microscopique revient à déterminer les valeurs propres et vecteurs propres qui minimisent l'hamiltonien H d'un système constitué de N_i noyaux ioniques de masse M_k , de numéro atomique Z_k et de N_e électrons de masse m_e , indicés l :

$$H = \sum_{k=1}^{N_i} \frac{p_k^2}{2M_k} + \sum_{k=1}^{N_i} \sum_{k' < k} \frac{Z_k Z_{k'} e^2}{|\mathbf{R}_k - \mathbf{R}_{k'}|} + \sum_{l=1}^{N_e} \frac{p_l^2}{2m_e} + \sum_{k=1}^{N_i} \sum_{l < l'} \frac{e^2}{|\mathbf{r}_l - \mathbf{r}_{l'}|} + \sum_{k=1}^{N_i} \sum_{l=1}^{N_e} \frac{Z_k e^2}{|\mathbf{R}_k - \mathbf{r}_l|}$$

Du fait de leur grande différence de masse, on peut faire l'hypothèse que le mouvement des ions et des électrons est découplé. L'approximation de Born-Oppenheimer

permet alors de scinder l'hamiltonien du système en deux contributions ionique H_i et électronique H_e qui peuvent alors être calculées séparément.

La contribution ionique ne dépend que de la position des noyaux :

$$H_i = \sum_{k=1}^{N_i} \frac{p_k^2}{2M_k} + \sum_{k=1}^{N_i} \sum_{k' < k} \frac{Z_k Z_{k'} e^2}{|\mathbf{R}_k - \mathbf{R}_{k'}|}.$$

La contribution électronique

$$H_e = \sum_{l=1}^{N_e} \frac{p_l^2}{2m_e} + \sum_{k=1}^{N_e} \sum_{l < l'} \frac{e^2}{|\mathbf{r}_l - \mathbf{r}_{l'}|} + \sum_{k=1}^{N_i} \sum_{l=1}^{N_e} \frac{Z_k e^2}{|\mathbf{R}_k - \mathbf{r}_l|}$$

dépend à la fois de la position des électrons et noyaux, comme le montre le dernier terme d'interaction électrostatique électron-ion.

Calcul de la structure électronique avec la théorie de la fonctionnelle de la densité

La structure électronique dépend des effets quantiques car la longueur d'onde thermique de De Broglie pour les électrons est grande devant la distance les séparant en moyenne. On va donc chercher à résoudre l'équation de Schrödinger pour un système de N_e électrons soumis à un potentiel coulombien extérieur créé par la présence de N_i ions fixes.

La théorie de la fonctionnelle de la densité (Density Functional Theory - DFT) se base sur les deux théorèmes de Hohenberg & Kohn [1964] qui énoncent que :

- l'énergie totale d'un système à plusieurs électrons en interaction mutuelle est un fonctionnelle unique de la densité,
- cette fonctionnelle énergie totale est minimale lorsque la densité électronique du système est égale à celle de l'état fondamental $n_0(\mathbf{r})$.

En d'autres termes, la seule connaissance de la densité électronique permet de calculer les propriétés du système entier :

$$E[n(\mathbf{r})] = T_0[n(\mathbf{r})] + \int n(\mathbf{r}) V_{ion}(\mathbf{r}) d\mathbf{r} + E_H[n(\mathbf{r})] + E_{xc}[n(\mathbf{r})],$$

où $E[n(\mathbf{r})]$ est la fonctionnelle énergie totale, T_0 est l'énergie cinétique d'un système d'électrons à la même densité, V_{ion} est le potentiel créé par les ions, E_H est l'énergie électrostatique de Hartree et E_{xc} est l'énergie d'échange-corrélation qui tient compte des effets à N-corps.

Cette idée était déjà présente dans les théories de Thomas-Fermi et de Hartree-Fock-Slater, mais ces approches tentent de décomposer le problème de la fonction d'onde polyélectronique en considérant des électrons indépendants dans un champ moyen, dans lequel les corrélations électroniques sont mal prises en compte, ou alors

à un coût numérique prohibitif. L'idée de la DFT est toujours de considérer des électrons indépendants, mais dans un potentiel effectif V_{eff} qui tient compte de toutes les interactions.

On utilise pour cela les équations de Kohn & Sham [1965] qui permettent de remplacer le système d'électrons en interaction par un système équivalent d'électrons indépendants dans un potentiel effectif V_{eff} . Les fonctions d'ondes de ces électrons indépendants qui minimisent la fonctionnelle de la densité $E[n(\mathbf{r})]$ sont les solutions des équations aux valeurs propres (en unités atomiques) :

$$\left[-\frac{1}{2}\nabla^2 + V_{eff}(\mathbf{r}) \right] \phi_{i,k}(\mathbf{r}) = \epsilon_{i,k}(\mathbf{r})\phi_{i,k}(\mathbf{r}),$$

où i est l'état électronique, k est le vecteur d'onde et où $\epsilon_{i,k}(\mathbf{r})$ et $\phi_{i,k}(\mathbf{r})$ sont les valeurs propres et fonctions d'onde de Kohn-Sham. Le potentiel effectif regroupe tous les termes non cinétiques $V_{eff}(\mathbf{r}) = V_{ion}(\mathbf{r}) + V_H[n(\mathbf{r})] + V_{xc}[n(\mathbf{r})]$.

A température non-nulle [Mermin 1965], les valeurs propres donnent la densité électronique par :

$$n(\mathbf{r}) = \sum_{i,k} f_{i,k} |\phi_{i,k}(\mathbf{r})|^2,$$

où $f_{i,k}$ est l'occupation du niveau i donnée par la fonction de distribution de Fermi-Dirac.

Le seul terme pas encore explicité est le terme d'échange-corrélation $E_{xc}[n(\mathbf{r})]$, et c'est là que subsiste la principale difficulté dans la mise en oeuvre de la DFT¹. Décrire l'interaction électron-électron en considérant un électron indépendant dans un champ moyen créé par toutes les autres particules ne suffit pas : il faut aussi tenir compte du fait que le mouvement de chaque électron est corrélé instantanément avec ceux des autres.

Pour cela ont été développées les fonctionnelles d'échange-corrélation de type LDA (Local Density Approximation), appropriées pour décrire un système dans lequel la densité $n(\mathbf{r})$ varie peu, puis GGA (Generalized Gradient Approximation) qui permet de tenir compte de la densité $n(\mathbf{r})$ et de son gradient $\nabla n(\mathbf{r})$. Le choix de la fonctionnelle d'échange-corrélation est crucial car ce terme va influencer directement sur la description des liaisons chimiques. Un moyen de valider ces fonctionnelles est de tester un système simple, comme une molécule d' H_2 , et de calculer son énergie de dissociation, ou encore de calculer le volume à l'équilibre d'un solide (par exemple [Clérouin *et al.* 2005]). Mais qu'en est-il de la validation de la fonctionnelle d'échange-corrélation pour un plasma dense ? C'est là la principale critique adressée à la simulation *ab initio* pour la modélisation des équations d'état des capsules de FCI [NIF 2012].

1. Payne *et al.* [1992] rappellent que l'antisymétrie de la fonction d'onde produit une séparation spatiale entre deux électrons de même spin, ce qui réduit l'énergie de Coulomb du système électronique. Cette réduction d'énergie est l'énergie d'échange. Ce terme d'échange peut être inclus dans un calcul d'énergie totale et on parle d'approximation de Hartree-Fock. Lorsque deux électrons de spins opposés sont espacés, l'énergie de Coulomb est réduite au prix d'un gain d'énergie cinétique des électrons. La différence d'énergie entre un tel système et l'énergie totale calculée dans l'approximation de Hartree-Fock est l'énergie de corrélation

Calcul de la structure ionique

La DFT permet de calculer la structure électronique pour une position des ions fixée. Une fois ce calcul convergé, on obtient l'ensemble des forces exercées sur les ions qui les mettent en mouvement. Le mouvement des ions est traité de manière classique puisque, contrairement aux électrons, leur longueur d'onde de De Broglie est petite devant la distance inter-ionique. Les trajectoires des ions sont propagées selon un pas de temps, aboutissant à une nouvelle structure électronique : un nouveau calcul de DFT est exécuté pour calculer le pas de temps suivant. Les calculs effectués dans le cadre des travaux présentés ici sont à température constante, ce qui implique que l'énergie cinétique des ions est conservée au cours du temps : on parle d'ensemble iso-cinétique.

2.3 Dissociation le long de l'Hugoniot

2.3.1 Premières études sur le plastique dopé au germanium

Expériences menées sur Gekko

Les premières expériences sur les matériaux plastiques ablateurs ont été menées sur l'installation Gekko en collaboration avec l'Université d'Osaka et ont été consacrées à la mesure de l'Hugoniot et de la réflectivité du plastique dopé au germanium CHOGe, avec des taux de dopant de 2,5% et 13% [Huser *et al.* 2013]. Les données de points d'Hugoniot dans le plan pression-densité avaient été obtenues par désadaptation d'impédance avec une référence quartz. Les données avaient alors été comparées aux modèles d'équation d'état QEOS et QEOS-Yukawa (Fig. 2.6) et l'accord avait été jugé satisfaisant².

L'accent de ces premiers travaux avait alors été mis sur les différences constatées entre l'ionisation estimée dans l'expérience (à partir d'un modèle de Drude) et l'ionisation de Thomas-Fermi utilisée dans QEOS [More 1985]. Les ionisations moyennes calculées le long de l'Hugoniot se trouvaient être environ 10 fois inférieures au calcul issu de la théorie de Thomas-Fermi (nous détaillerons ce point dans le chapitre suivant).

Simulations *ab initio*

Nous avons cherché à progresser dans la description des propriétés électroniques du plastique dopé au germanium sous choc à l'aide de simulations *ab initio* [Huser *et al.* 2015] avec le code de dynamique moléculaire quantique ABINIT [Gonze *et al.* 2009]. Ces simulations utilisaient comme données d'entrée les densités et températures mesurées au cours des expériences et cherchaient dans un premier temps à restituer la

2. Dans la publication d'où est extraite la figure 2.6, les données avaient été analysées à l'aide de la référence quartz de Hamel *et al.* [2012]. Une réanalyse ultérieure des données à l'aide d'une nouvelle référence pour l'équation d'état du quartz accentuera le désaccord entre les données et le modèle QEOS. Ce point est traité dans (2.4.2).

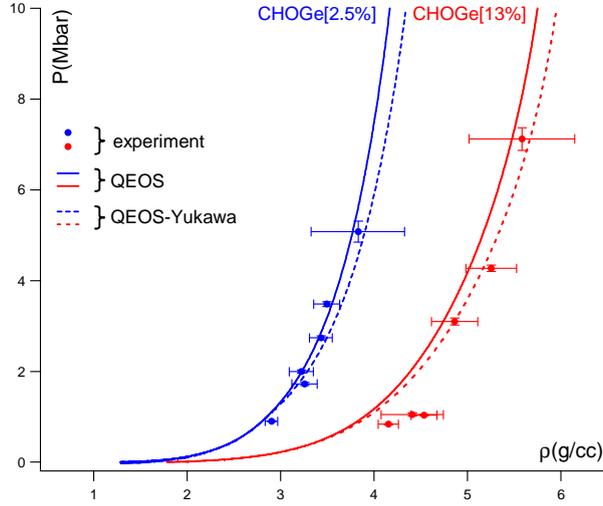


FIGURE 2.6 – Courbes d’Hugoniot principales pour le plastique dopé au germanium à 2,5% (bleu) et 13% (rouge).

pression du choc avant de faire des calculs de structure électronique. Il ne s’agissait donc pas de calcul d’Hugoniot à proprement parler, mais de simulations d’états observés expérimentalement.

La principale difficulté des simulations *ab initio* était de pouvoir simuler des mélanges de C, H, O et Ge à des températures élevées (de un à quelques eV). A ces températures, les vitesses thermiques des atomes composant le mélange sont très différentes du fait de leurs masses : à chaque pas de temps les atomes d’hydrogène parcourent des distances beaucoup plus grandes que les atomes de germanium. Pour éviter des recouvrements d’orbitales trop importants, le pas de temps est alors déterminé par la vitesse thermique des atomes d’hydrogène. De plus, une description appropriée du germanium impose des énergies de coupures élevées ce qui se traduit par un grand nombre de bandes à calculer explicitement. Ces conditions imposent des temps de calculs beaucoup plus longs que ceux effectués sur des mélanges de CH pur dans des conditions similaires [Hamel *et al.* 2012, Hu *et al.* 2014a].

Nous nous sommes alors inspiré d’une technique, utilisée pour la simulation de biomolécules, qui consiste à égaliser toutes les masses atomiques [Kunz *et al.* 2011, Michielssens *et al.* 2012]. En effet, la dynamique des ions dans nos simulations *ab initio* est classique, si bien que les masses affectent les propriétés dynamiques, comme la viscosité ou les coefficients de diffusion, mais pas les variables thermodynamiques. En d’autres termes, cela revient à dire que l’hamiltonien du système peut s’écrire

$$H(\mathbf{p}^N, \mathbf{r}^N) = K(\mathbf{p}^N) + V(\mathbf{r}^N), \quad (2.1)$$

où $K(\mathbf{p}^N)$ est l’énergie cinétique qui ne dépend que de la quantité de mouvement des N atomes ($\mathbf{p}^N = (p_1, \dots, p_N)$), et $V(\mathbf{r}^N)$ est l’énergie potentielle qui ne dépend que des positions ($\mathbf{r}^N = (r_1, \dots, r_N)$) des N atomes.

Les simulations sont effectuées dans l'ensemble NVT , ce qui permet de dire qu'une observable thermodynamique $\langle X \rangle$ s'écrit comme dans l'ensemble canonique :

$$\langle X \rangle = \frac{\int X(\mathbf{r}^N) e^{-\beta H(\mathbf{p}^N, \mathbf{r}^N)} d\mathbf{p}^N d\mathbf{r}^N}{\int e^{-\beta H(\mathbf{p}^N, \mathbf{r}^N)} d\mathbf{p}^N d\mathbf{r}^N}, \quad (2.2)$$

où β est le coefficient beta thermodynamique $\beta = 1/k_B T$. L'expression (2.1) du hamiltonien séparable en \mathbf{r}^N et en \mathbf{p}^N permet d'éliminer les termes dépendant de \mathbf{p}^N , et l'observable thermodynamique ne dépend plus que de la position \mathbf{r}^N :

$$\langle X \rangle = \frac{\int X(\mathbf{r}^N) e^{-\beta V(\mathbf{r}^N)} d\mathbf{r}^N}{\int e^{-\beta V(\mathbf{r}^N)} d\mathbf{r}^N}.$$

Cette technique a donc permis d'effectuer des simulations avec les masses atomiques prises égales à la masse du carbone ($A = 12$) et avec un pas de temps de 1 fs. Quelques comparaisons avec des simulations de référence utilisant les masses réelles ont été effectuées pour vérifier que les pressions et fonctions de distribution radiale calculées étaient équivalentes.

Les résultats sont résumés dans le plan pression-compression sur la figure 2.7, et comparés aux modèles d'équations d'état dont nous disposons, ainsi qu'à des données sur le polystyrène de Barrios *et al.* [2010]. Les simulations *ab initio* ont été effectuées en utilisant les densités et températures mesurées. Les barres d'erreur sur les pressions calculées sont dues à l'incertitude de mesure de la température par le diagnostic d'émission propre, typiquement de $\pm 15\%$.

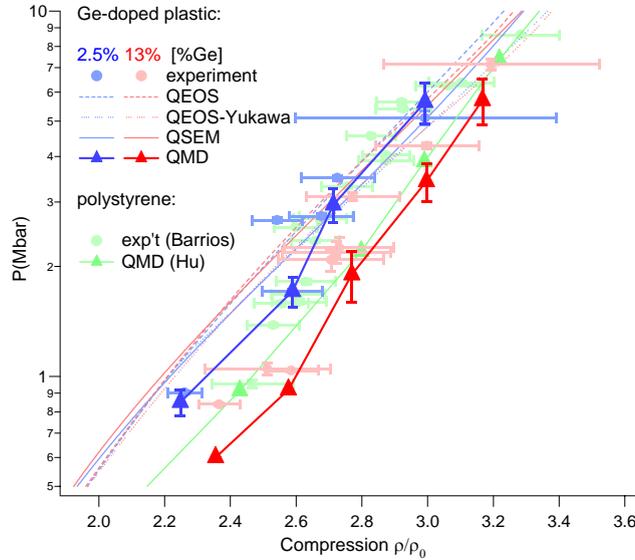


FIGURE 2.7 – Mesures et modélisations d'états sur d'Hugoniot pour le CHOGe dopé à 2,5% (bleu), à 13% (rouge), et pour le polystyrène (vert).

On remarque que tous les modèles d'atome moyen, QEOS, QEOS-Yukawa et QSEM, diffèrent très peu l'un de l'autre dans le plan pression-compression, quel que soit le

taux de dopant. Les données expérimentales, tous matériaux confondus, se distinguent également difficilement l'une de l'autre. Le fait que les données soient également en accord avec celles du polystyrène indiquent que la structure amorphe du CH produite par polymérisation plasma n'a pas d'influence sur sa compressibilité, définie par $\kappa = \eta^2 \partial \eta / \partial p$, avec $\eta = \rho / \rho_0$.

Ce réexamen des données d'Hugoniot principale montre que les pressions de choc mesurées sont systématiquement quelques dizaines de GPa en-deçà des prédictions par les modèles pour des compressions $\eta < 2,6 - 2,8$. Ce décalage en pression par rapport aux modèles d'atome moyen est bien reproduit par les simulations *ab initio*, notamment en ce qui concerne la diminution de la compressibilité pour $\eta \sim 2,6 - 2,8$.

Mise en évidence de la dissociation

L'examen des fonctions de distribution radiales (Fig. 2.8) permet d'expliquer comment les simulations *ab initio* restituent les mesures. Celles-ci montrent que le CHOGe peut être considéré comme un liquide moléculaire (comprenant des liaisons C-C, C-O, C-H et O-H) pour des températures inférieures à 1 eV. Pour des températures de choc proches de 1 eV et des compressions η proches de 2,6, seules les liaisons C-C subsistent. Au-delà, toutes les liaisons disparaissent et un état de liquide simple est obtenu. La présence de liaisons C-C signifie qu'il existe des modes de vibrations permettant d'absorber la chaleur par rapport à un système complètement dissocié. Cet effet est d'autant plus visible en deçà de $\eta = 2,6$ dans le CHOGe dopé à 13% : la température varie peu et les liaisons C-C restent nombreuses.

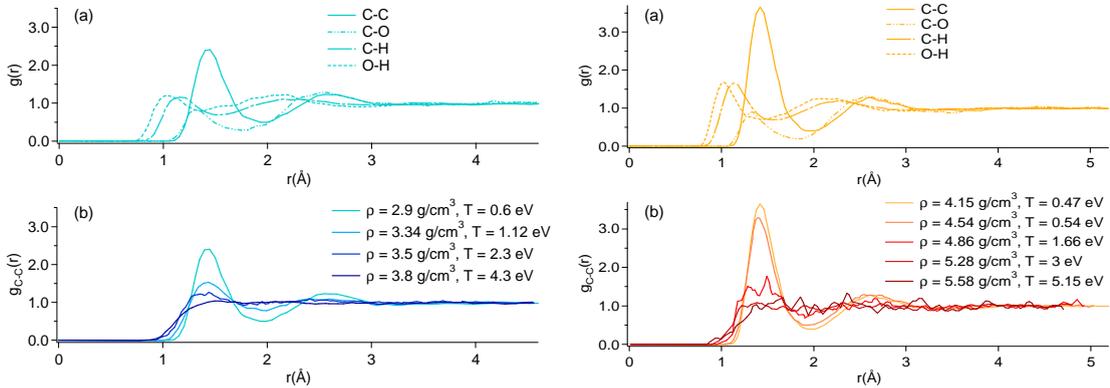


FIGURE 2.8 – Fonctions de corrélations de paires des états choqués simulés pour le CHOGe dopé à 2,5% (bleu) et à 13% (rouge).

On trouve ainsi une explication aux désaccords entre les données expérimentales et les modèles d'atome moyen. Ceux-ci n'incluent pas de description de liquide moléculaire, mais restituent les données expérimentales du moment que la température est suffisamment élevée pour que les systèmes considérés soient complètement dissociés. Ces lacunes dans la description physique des ablateurs par les modèles d'équation d'état tabulés peuvent avoir une incidence sur le fonctionnement d'une capsule de FCI.

En effet, la dissociation des plastiques a lieu dans la gamme de pression du premier choc de la séquence d'implosion d'une capsule de FCI (2-3 Mbar), ce qui conduit à un biais sur la vitesse de choc dans les simulations utilisant des modèles d'atome moyen.

2.3.2 La simulation *ab initio* utilisée comme outil de prédiction

La simulation *ab initio* s'est révélée être le meilleur outil pour décrire la structure des matériaux ablateurs d'une capsule dans les conditions d'un plasma dense typique de la FCI. Nous en avons donc fait usage de manière systématique pour les études qui ont suivi concernant le plastique non dopé et le plastique dopé au silicium.

Le point de départ des études *ab initio* pour la modélisation des équations d'état a été de calculer la courbe froide du CH-GDP [Colin-Lalu *et al.* 2015], dans le but de vérifier la validité de la correction de Barnes [1967] dans les modèles d'atome moyen. Ces calculs ont ensuite été généralisés aux isochores pour des températures de l'ordre de l'eV, ce qui a permis de construire des courbes d'Hugoniot *ab initio* à comparer aux modèles et aux données expérimentales. Enfin, la donnée de la courbe froide et de la courbe d'Hugoniot a permis d'obtenir le paramètre de Grüneisen qui permet de décrire la dissociation au sein des modèles d'équations d'état.

Calcul de la courbe froide

Un solide comprimé peut se décrire en décomposant son énergie libre en trois composantes indépendantes représentant chacune les contributions élastiques, les contributions thermiques ioniques et les contributions thermiques électroniques [Zel'dovich & Raizer 1967]. Les modèles d'atome moyen du type de QEOS décomposent l'énergie libre selon des contributions électroniques et ioniques, sans distinguer explicitement les composantes thermiques et élastiques.

Dans QEOS, la contribution électronique est donnée par la théorie de Thomas-Fermi, et comme l'indiquent More *et al.* [1988], n'est valable qu'au-delà de ~ 10 eV. On obtient alors dans les conditions normales une pression totale due aux électrons de l'ordre du Mbar. Pour corriger cet excès de pression, une correction de liaison chimique [Barnes 1967] est utilisée. Cette correction est dérivée d'un potentiel de Morse et ajustée empiriquement de façon à restituer les conditions normales (pression nulle et module de compressibilité).

Pour obtenir une description de la courbe froide dans les modèles d'équation d'état qui soit indépendante de paramètres extérieurs, l'isotherme à 300K du CH-GDP (que l'on assimile à la courbe froide) a été calculée à l'aide de simulations de dynamique moléculaire quantique avec le code ABINIT. La principale difficulté rencontrée était d'obtenir une description aussi réaliste que possible de la structure amorphe du CH-GDP avec des ensembles réduits à 250 atomes pour éviter des temps de calculs prohibitifs. Pour cela, une première série de simulations à la densité normale était effectuée à 3000K afin de générer un liquide désordonné. Une fois les calculs convergés, les configurations sont trempées à 1000K puis à 300K. C'est au cours de cette dernière étape que les liaisons se forment. Cette dernière étape du calcul est particulièrement longue

à converger et s'étale sur plusieurs semaines de temps de calculateur. La structure obtenue a ensuite été comprimée jusqu'à 10 fois la densité du solide afin de générer une courbe froide.

L'examen des fonctions de corrélation de paires a permis d'obtenir des informations sur la structure ionique des états simulés. L'état du CH-GDP calculé à la densité normale comprend des liaisons C-C simples, doubles et triples. En augmentant la compression, les liaisons triples disparaissent à ~ 20 GPa, puis les liaisons doubles à ~ 50 GPa (Fig. 2.9). Ces changements de structure se manifestent par des changements de concavité de la courbe froide.

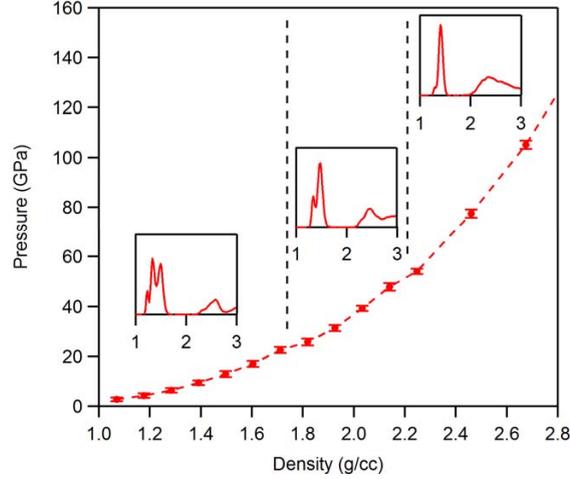


FIGURE 2.9 – Evolution des liaisons C-C le long de la courbe froide dans le cas du CHO.

L'ensemble des points peut être ajusté par une expansion polynômiale d'une fonction de Holzapfel [1998], paramétrée par la densité et le module de compressibilité mesurés pour le CH-GDP :

$$P_c(x) = 3K_0 \frac{1-x}{x^5} \exp \{c_0(1-x)\} (1 + c_2x(1-x)), \quad (2.3)$$

où $x = (\rho_0/\rho)^{1/3}$, $c_2 = 3/2(K'_0 - 3) - c_0$, et $c_0 = -\ln(3K_0/p_{\text{FG0}})$, avec p_{FG0} la pression du gaz de Fermi effective $p_{\text{FG0}} = a_{\text{FG}}(Z/V_0)^{5/3}$, $a_{\text{FG}} = 23.37 \text{ MPa}\cdot\text{nm}^5$ le paramètre du gaz de Fermi.

Cette modélisation analytique de la courbe froide permet de recouvrer le comportement Thomas-Fermi à haute pression tout en intégrant les points calculés *ab initio*. On remarque toutefois que les calculs *ab initio* effectués à partir d'une trempe à la densité normale convergent vers une pression résiduelle de ~ 3 GPa, alors que la modélisation analytique par définition donne une pression nulle à la densité normale.

Par ailleurs, des mesures expérimentales effectuées en cellule à enclume de diamant sur synchrotron [Plisson *et al.* 2016], ont montré que la présence de liaisons triples dans les calculs *ab initio* était artéfactuelle. Les mesures effectuées au cours de cette

expériences étaient limitées à une pression de 50 GPa et sont en bon accord avec l’ajustement (2.3), mais ne restituent pas le changement de concavité de la courbe froide autour de 20 GPa (Fig. 2.10).

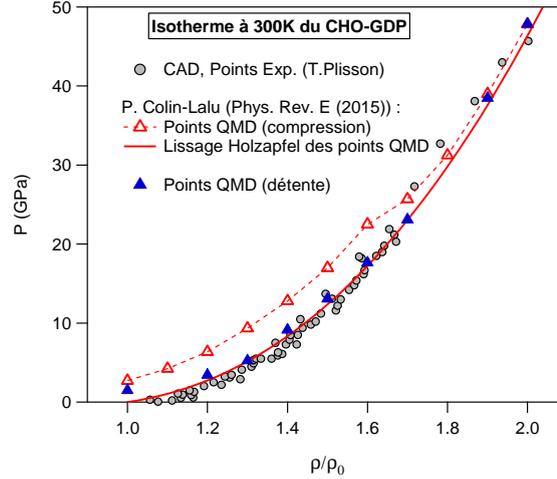


FIGURE 2.10 – Comparaison de la courbe froide du CHO calculée par simulation *ab initio* avec les mesures en cellule à enclume de diamant (points gris). Calculs en compression (triangles rouges), en détente (triangles bleus) et ajustement numérique (courbe pleine rouge).

Les calculs *ab initio* ont alors été modifiés pour restituer les résultats obtenus en cellule à enclume de diamant. En effectuant une trempe à 2 g/cm^3 puis en détendant la configuration obtenue à différentes densités jusqu’à la densité normale, on trouve un accord avec les mesures statiques et la modélisation analytique ajustée sur les calculs effectués au-delà de 2 g/cm^3 .

Sur tout le domaine de densité considéré (jusqu’à 10 g/cm^3), la courbe froide du CH-GDP, représenté par la structure CHO, a été comparée avec les modèles d’atome moyen décrits dans la section 2.1 (Fig. 2.11). Les différences en pression augmentent avec la densité et approchent le Mbar pour les densités les plus élevées. L’effet de la présence d’oxygène dans la structure atomique a aussi été évalué et conduisait à des différences du même ordre de grandeur. Le but de cet étude était de tester la correction de Barnes [1967] utilisée dans les modèles d’atome moyen. La courbe froide simulée montre que cette correction est finalement assez proche de cette correction, à quelques dizaines de GPa près. Ces écarts en pression peuvent au premier abord sembler tout à fait dérisoires dans le contexte de la FCI, puisque la couche d’ablateur d’une capsule est soumise à des pressions atteignant jusqu’à 100 Mbar. Cependant, en supposant que ces écarts en pression froide se répercutent directement sur l’Hugoniot, on peut estimer que ceux-ci provoquent des décalages dans la prévision de la chronométrie des chocs pouvant atteindre $\sim 200\text{-}250 \text{ ps}$, ce qui est au-delà de la tolérance de fonctionnement des cibles de $\pm 50\text{-}100 \text{ ps}$ mentionnée dans l’introduction de ce manuscrit.

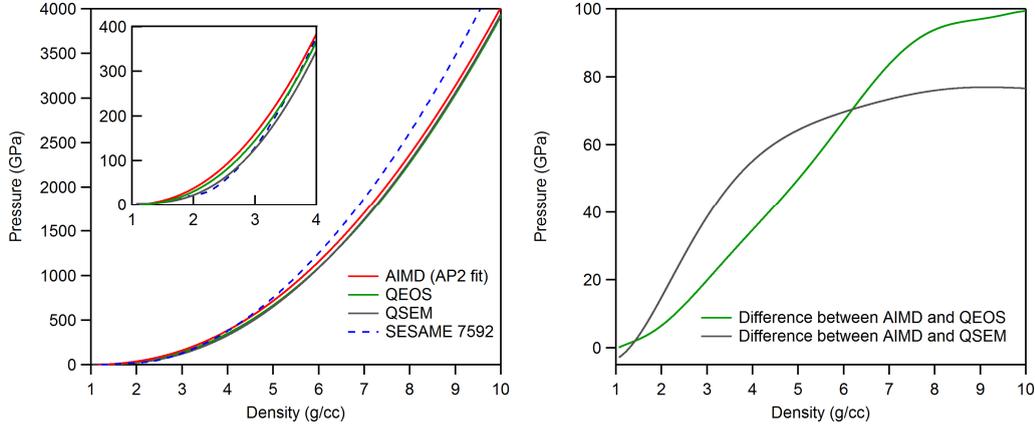


FIGURE 2.11 – Comparaison de la courbe froide du CHO avec les courbes froides des modèles d’atome moyen (gauche) et écarts en pression avec les modèles QEOS et QSEM (droite).

Calcul d’isochores et de la courbe d’Hugoniot

Les calculs entrepris sur la courbe froide du CH-GDP ont été généralisés à des calculs d’isochores pour plusieurs températures [Colin-Lalu *et al.* 2016]. Pour chaque point calculés, nous pouvons extraire l’énergie interne E . Par interpolation, on peut ensuite déterminer le lieu de la courbe d’Hugoniot en utilisant la conservation de l’énergie dans la relation d’Hugoniot-Rankine :

$$E_1 - E_0 = \frac{1}{2}(P_1 + P_0)\left(\frac{1}{\rho_0} - \frac{1}{\rho_1}\right), \quad (2.4)$$

où E est l’énergie interne, P est la pression, ρ est la densité, et où les indices 0 and 1 désignent respectivement l’état initial et sur l’Hugoniot. Les isochores sont calculées dans une région où l’on s’attend à trouver la courbe d’Hugoniot, en l’occurrence entre 2,4 et 3,4 g/cm³ et entre 0,25 et 6 eV (Fig. 2.12). L’énergie interne initiale E_0 et la configuration atomique correspondante sont extraites du calcul précédent de la courbe froide.

A partir des conditions sur l’Hugoniot déterminées par interpolation, un deuxième ensemble de calculs est mené pour étudier la structure ionique. Pour le point le plus bas sur l’Hugoniot, la fonction de corrélation de paires pour les atomes de carbone $g_{C-C}(r)$ possède un pic prononcé à $r = 1,5 \text{ \AA}$ (Fig. 2.13). Cette valeur de r est en bon accord avec la longueur de liaison simple C-C que l’on peut trouver dans les *handbooks* de chimie, ce qui permet d’associer ce pic à la présence de liaisons entre les atomes de carbone. Des conclusions similaires peuvent être tirées de l’examen des fonctions de corrélation de paires C-H et H-H, et le CH-GDP peut alors être décrit comme un liquide moléculaire. Lorsque la température et la densité le long de l’Hugoniot augmentent, les liaisons H-H, C-H puis C-C tour à tour disparaissent de sorte que l’état simulé correspond à un liquide simple à partir de $\rho \approx 3 \text{ g/cm}^3$ et $T \approx 1,28 \text{ eV}$. Cet effet de la dissociation se manifeste également sur la forme des isochores en énergie montrées

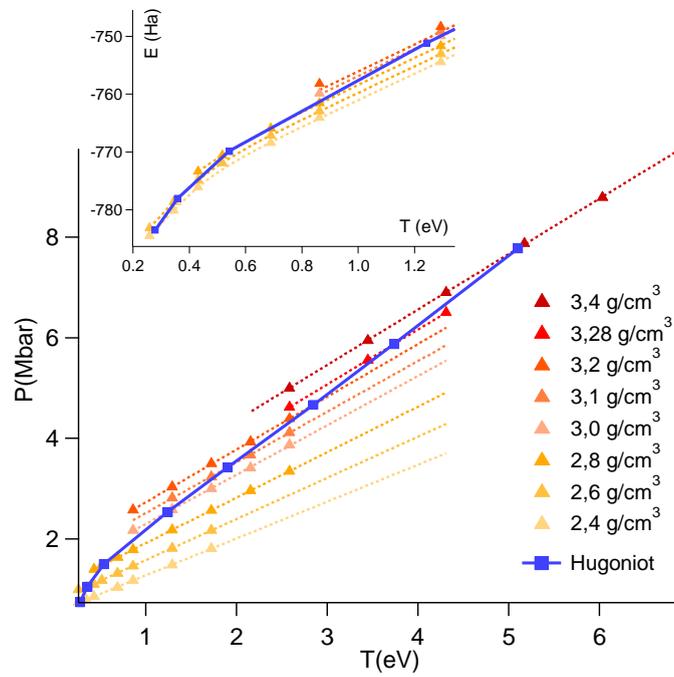


FIGURE 2.12 – Isochores du CH-GDP calculées par simulation *ab initio*. L'insert montre un agrandissement des isochores dans le plan énergie-température près des conditions normales. Les lignes en pointillés sont des droites qui servent de guide visuel.

dans le médaillon de la figure 2.12. Lorsque la température est inférieure à $\sim 0,5$ eV et que des liaisons sont présentes, les isochores sont incurvées puis deviennent linéaires pour des températures plus élevées.

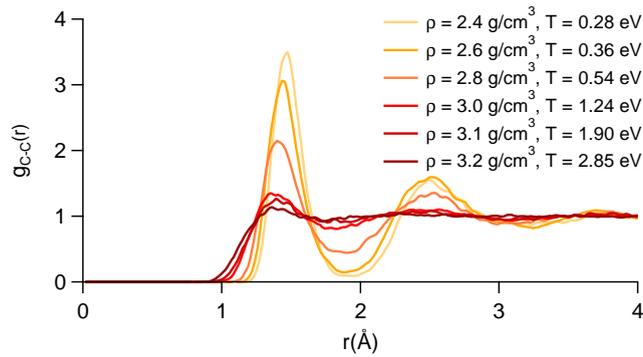


FIGURE 2.13 – Fonction de corrélation de paires C-C pour plusieurs états simulés sur l'Hugoniot.

2.3.3 Intégration dans les modèles d'équation d'état

Comme les premières études sur le plastique dopé au germanium l'ont montré, la dissociation a un effet sur la compressibilité de l'Hugoniot. Nous avons donc cherché à intégrer une description de la dissociation dans les modèles d'équation d'état. Comme tous les modèles décrits en début de ce chapitre sont basés sur l'hypothèse d'un atome moyen, nous allons recourir à une description artéfactuelle de la dissociation. L'idée est alors de modifier la partie ionique de ces modèles en incluant une formulation analytique du coefficient de Grüneisen Γ qui traduise le phénomène de dissociation.

Pour cela, rappelons que $\Gamma = V(\frac{\partial P_{th}}{\partial E_{th}})_V$, qui dépend des composantes thermiques (électroniques et ioniques) de l'équation d'état, peut alors être exprimé en fonction des pressions sur la courbe froide et sur l'Hugoniot $P_c(\rho)$ et $P_H(\rho)$ par :

$$\Gamma(\rho) = \frac{1}{\rho} \frac{P_H(\rho) - P_c(\rho)}{\left[\frac{1}{2}(P_H(\rho) + P_0) \left(\frac{1}{\rho} - \frac{1}{\rho_0} \right) - \int_{\rho_0}^{\rho} P_c(\rho') / \rho'^2 d\rho' \right]}, \quad (2.5)$$

où 0 désigne l'état dans les conditions normales et où l'intégrale est la contribution de la courbe froide à l'énergie totale.

Le paramètre de Grüneisen ainsi calculé pour le CH-GDP est proche de 0,1 à basse densité puis augmente et tend vers $\sim 0,72$ lorsque le fluide est complètement dissocié (Fig. 2.14).

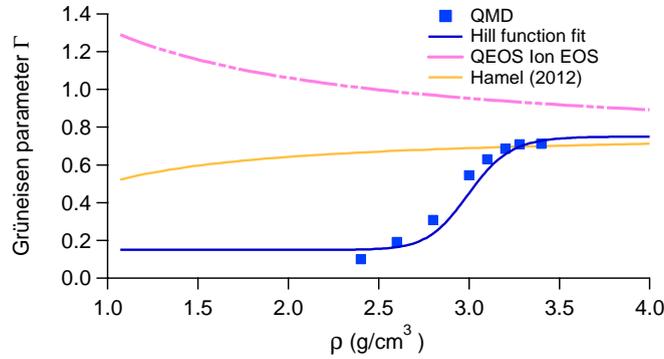


FIGURE 2.14 – Paramètre de Grüneisen du CH-GDP déduit des calculs *ab initio* de la courbe froide et de l'Hugoniot, ajusté par une fonction de Hill, et comparé à QEOS et au modèle de Hamel *et al.* [2012] pour le CH_{1,36}.

On peut alors exprimer un coefficient de Grüneisen effectif en utilisant une fonction de Hill :

$$\Gamma_{\text{eff}}(\rho) = x_{\min} + \frac{x_{\max} - x_{\min}}{1 + \left(\frac{x_1}{\rho} \right)^n}, \quad (2.6)$$

où x_{\min} , x_{\max} , x_1 et n sont des paramètres d'ajustement. Pour assurer la cohérence thermodynamique, ces paramètres sont aussi utilisés pour exprimer la température de

Debye Θ_D et la température de fusion T_m , données par :

$$\Theta_D(\rho) = \Theta_{D,0} \left(\frac{\rho}{\rho_0} \right)^{x_{\min}} \left(\frac{\rho^n - x_1^n}{\rho_0^n - x_1^n} \right)^{(x_{\max} - x_{\min})/n} \quad (2.7)$$

$$T_m(\rho) = T_{m,0} \left(\frac{\rho}{\rho_0} \right)^{2x_{\min} - 2/3} \left(\frac{\rho^n - x_1^n}{\rho_0^n - x_1^n} \right)^{2(x_{\max} - x_{\min})/n} . \quad (2.8)$$

Le Γ effectif est réinjecté dans le modèle ionique de manière à générer une courbe d'Hugoniot qui passe par les points $P_H(\rho)$ calculés. Cette procédure d'ajustement produit un Γ effectif décalé de 2-3% en densité par rapport aux points calculés avec l'équation (2.5), car cette dernière inclut par définition toutes les contributions thermiques ioniques et électroniques. En d'autres termes, ajuster le Γ effectif revient à lui soustraire sa contribution électronique, puisque celle-ci sera calculée par ailleurs dans le modèle électronique.

Le paramètre de Grüneisen ainsi déterminé diffère de celui extrait du modèle QEOS qui décroît avec la densité, mais se trouve en meilleur accord avec le modèle de Hamel *et al.* [2012] pour le $\text{CH}_{1,36}$ qui produit également un paramètre de Grüneisen qui croît avec la densité. Ce modèle est cependant une équation d'état de Mie-Grüneisen ajustée sur des calculs *ab initio* en phase liquide qui n'incluent pas de description de la dissociation.

Nous avons introduit la courbe froide simulée avec ABINIT et le paramètre de Grüneisen effectif dans le modèle de Cowan au sein du modèle QSEM. Lorsque l'on compare les courbes d'Hugoniot principales extraites de ces modèles (Fig. 2.15), on voit très clairement la différence entre le modèle QSEM et le modèle QEOS dans sa version originale : la compressibilité relative est beaucoup plus importante dans le domaine 0,5-10 Mbar et 0,2-5 eV. Les modèles LEOS 5350 (Livermore Equation Of State) ou Hamel *et al.* [2012] sont également plus compressibles que QEOS. La table LEOS 5350 inclut une description de la dissociation, mais uniquement par le biais du modèle de Young & Corey [1995] dont les paramètres sont ajustés arbitrairement.

L'originalité du modèle proposé est donc de tenir compte de la dissociation grâce à un calcul dédié et dépourvu de paramètres extérieurs. Enfin, notons que la courbe d'Hugoniot obtenue grâce aux calculs *ab initio* effectués dans une région limitée du diagramme de phase est en bon accord avec d'autres travaux effectués dans des domaines complémentaires [Mattsson *et al.* 2010, Hu *et al.* 2014a, 2015] .

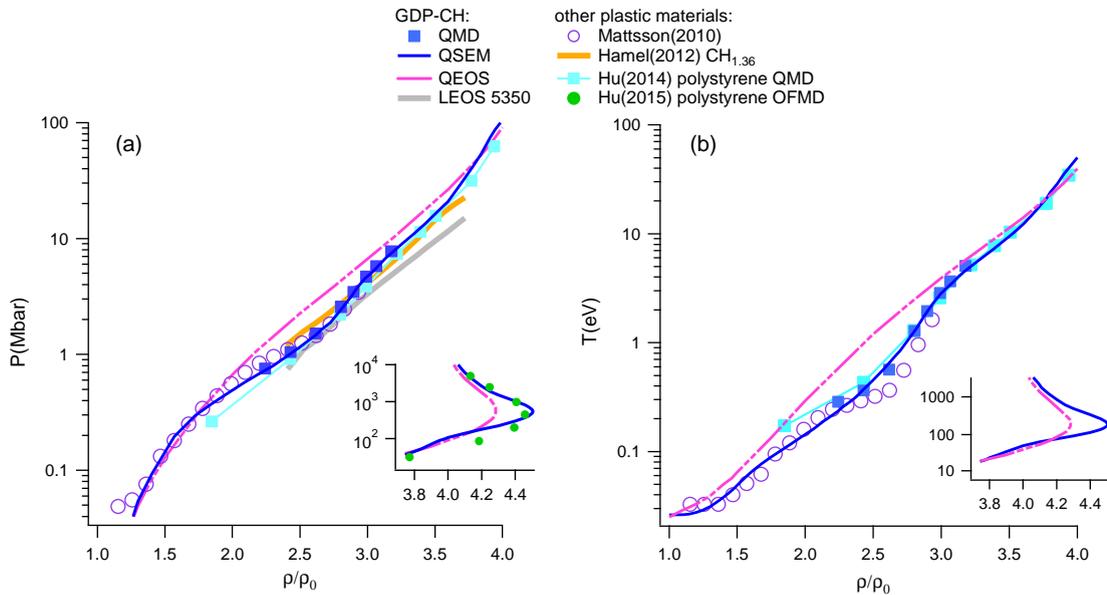


FIGURE 2.15 – Hugoniot du GDP-CH dans les plans (a) pression-compression et (b) température-compression. Le modèle QSEM (trait bleu) est ajusté sur les simulations *ab initio* (carrés bleus), et comparé à QEOS (rose) et LEOS5350 (gris, pris dans [Hamel *et al.* 2012]). D’autres simulations de matériaux plastiques sont également montrées : polyéthylène[Mattsson *et al.* 2010], polystyrène[Hu *et al.* 2014a] et $\text{CH}_{1,36}$ [Hamel *et al.* 2012]. Enfin des simulations OFMD (Orbital Free Molecular Dynamics) pour le polystyrène à haute température[Hu *et al.* 2015] sont également incluses.

2.4 Validation expérimentale

Le modèle QSEM tenant compte de la dissociation a été validé expérimentalement lors de campagnes laser sur l'installation LULI2000 pour le CH-GDP et sur GekkoXII pour le CH dopé au silicium. Nous présentons ici les données recueillies au cours de ces expériences, et montrons que celles-ci présentent toutes la même dépendance à la compression, comme ce qui avait été déjà soulevé lors de l'analyse des expériences sur le CHGe. Enfin, nous verrons qu'en réanalysant les autres données de désadaptation d'impédance disponibles dans la littérature à l'aide d'une équation d'état de référence commune, nous pouvons généraliser nos conclusions à tous les matériaux plastiques connus.

2.4.1 Mesures des courbes d'Hugoniot du CH-GDP et du CHOSi

La courbe d'Hugoniot du CH-GDP a été mesurée par la méthode de désadaptation d'impédance avec une référence en aluminium[Colin-Lalu *et al.* 2016], alors que la courbe d'Hugoniot du CH dopé au silicium a été mesurée en utilisant une référence en quartz. Dans les deux cas (Fig. 2.16), l'effet de la dissociation sur l'Hugoniot pour des pressions de l'ordre du Mbar est clairement confirmé par les données expérimentales : la compressibilité est plus importante que celle prédite par le modèle d'atome moyen QEOS. Corrélativement, les températures mesurées sont également plus faibles que celles prédites par QEOS, puisque la présence de liaisons permet l'existence de modes de vibration qui emmagasinent de la chaleur latente lors d'une compression par choc, ce qui n'est pas décrit par un modèle d'atome moyen.

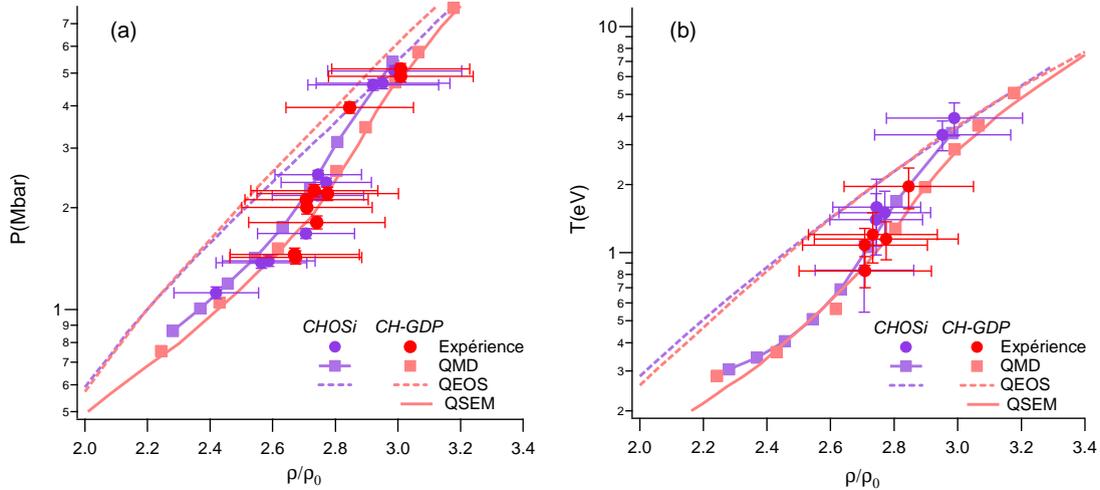


FIGURE 2.16 – Données expérimentales, modèles et simulations *ab initio* de l'Hugoniot du CH-GDP et du CH dopé au silicium dans le plan pression-compression (a) et température-compression (b).

La figure 2.16 superpose les mesures de pression et de température en fonction de la

compression. Tout comme ce qui avait été constaté pour le CH dopé au germanium, les deux jeux de données se superposent aux incertitudes de mesure près. Nous avons également inclus les courbes d'Hugoniot extraites du modèle QEOS, ainsi que les courbes calculées par la dynamique moléculaire quantique. Dans le cas du CH dopé au silicium, les points de simulations *ab initio* ont été obtenus par l'équation de conservation de l'énergie (2.4), l'énergie interne initiale étant déterminée à partir d'une mise à l'échelle de la courbe froide du CH-GDP.

2.4.2 Influence de la référence

Les mesures que nous venons de présenter ainsi que celles publiées par d'autres groupes sur des matériaux similaires dépendent toutes de l'équation d'état de la référence utilisée pour effectuer la désadaptation d'impédance. Comme évoqué dans (2.2.1), les équations d'état du quartz et de l'aluminium ont fait l'objet de plusieurs évaluations, ce qui a conduit à des controverses entre les groupes de la Sandia [Knudson & Desjarlais 2009, 2013, 2015] et du Lawrence Livermore National Laboratory [Hicks *et al.* 2005, Hamel *et al.* 2012], et à des réanalyses des données d'Hugoniot publiées. Ces évolutions de l'équation d'état de la référence ont eu des conséquences importantes pour l'hydrogène [Knudson & Desjarlais 2009], mais également pour le CH-GDP, comme indiqué dans la figure 2.17 sur laquelle Knudson & Desjarlais [2013] montrent les différentes réanalyses des données de Barrios *et al.* [2012] sur le CH-GDP.

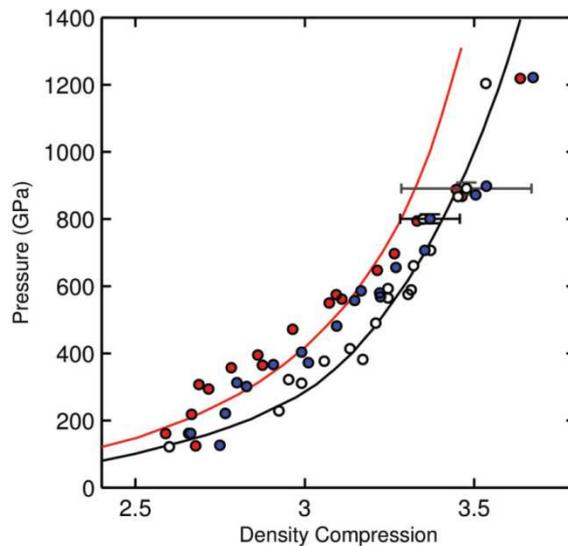


FIGURE 2.17 – Analyses successives des données sur le CH-GDP de Barrios *et al.* [2012] à l'aide des références quartz publiées par Hicks *et al.* [2006] (cercles blancs), Hamel *et al.* [2012] (rouge) et Knudson & Desjarlais [2013] (bleu). Les courbes en traits pleins représentent les modèles SESAME [1992] et Hamel *et al.* [2012]. Figure empruntée à Knudson & Desjarlais [2013].

Cette réanalyse des données a eu une influence sur l'interprétation vis à vis des modèles d'équation d'état. Lors de la publication des données de Barrios *et al.* [2010], la référence était le quartz décrit par Hicks *et al.* [2005], ce qui a conduit les auteurs à conclure que les matériaux étudiés pouvaient être décrits à l'aide des tables SESAME [1992]. Une première mise à jour de l'équation d'état du quartz par Knudson & Desjarlais [2009] a ensuite conduit le groupe de Livermore à faire évoluer leur équation d'état de référence pour le quartz ainsi qu'à proposer une nouvelle équation d'état pour le CH-GDP [Hamel *et al.* 2012].

Les différents jeux de données présentés dans ce mémoire utilisent les références qui étaient disponibles au moment où elles ont été publiées. Ainsi les données sur le CHOGe utilisent la référence quartz décrite par Hamel *et al.* [2012], qui est quasiment confondue avec celle de Knudson & Desjarlais [2009]. Les données sur le CH-GDP et le CH dopé au Si ont été extraites à l'aide des références plus récentes et plus complètes de Knudson & Desjarlais [2013] pour le quartz et Knudson & Desjarlais [2015] pour l'aluminium. Ces deux références bibliographiques comprennent des modélisations de la courbe d'Hugoniot ainsi que de la détente isentropique. Comme dans les références antérieures, une équation d'état de Mie-Grüneisen est utilisée pour calculer la détente, mais avec une Hugoniot et un paramètre de Grüneisen effectifs, dépendant de la vitesse fluide dans la référence.

Les références d'équation d'état utilisées pour l'extraction des données concernant les matériaux ablateurs trouvées dans la littérature et dans ce document sont résumées dans le tableau ci-dessous.

Source	Matériau référence	Matériau d'étude	Données analysées
Hicks <i>et al.</i> [2005]	Al	Qz	CH, CH ₂ [Barrios <i>et al.</i> 2010] CH-GDP, CHOGe(0,7%) [Barrios <i>et al.</i> 2012]
Hamel <i>et al.</i> [2012]	Qz	CH _{1,36}	CHOGe(2,5% et 13%) [Huser <i>et al.</i> 2013, 2015]
Knudson & Desjarlais [2013]		Qz	CHOSi Ce document
Knudson & Desjarlais [2015]		Al	CH-GDP [Colin-Lalu <i>et al.</i> 2016]

Ces jeux de données sont équivalents en compression lorsqu'ils ont été obtenus avec la même équation d'état de référence. Il est alors intéressant de regrouper toutes les données existantes et de les analyser à l'aide des différentes références utilisées pour la désadaptation d'impédance. Sur la figure 2.18 nous avons réuni les données concernant

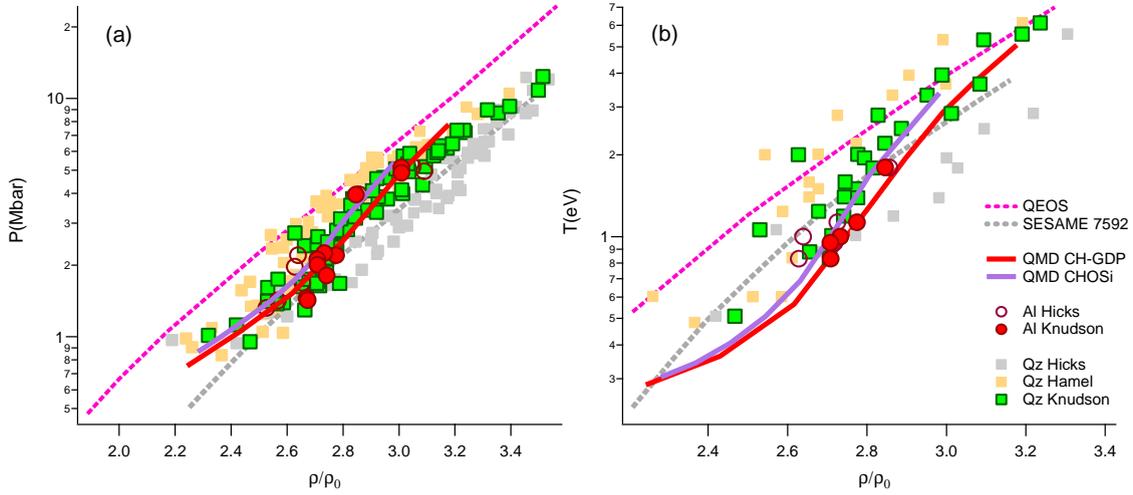


FIGURE 2.18 – Influence de la référence sur l’Hugoniot dans le plan pression-compression (a) et température-compression (b).

le CHOGe dopé à 2,5 et 13% (cf. 2.3.1), le polystyrène et le polyéthylène de Barrios *et al.* [2010], le CH-GDP et le CHOGe dopé à 0,7% de Barrios *et al.* [2012], ainsi que le CH-GDP et le CHOSi étudiés dans nos expériences. Les codes de couleur dans cette figure ne concernent que la référence utilisée dans la désadaptation d’impédance. On voit alors que se dessinent trois nuages de points qui se distinguent bien les uns des autres.

Toutes les données analysées avec la référence quartz de Hicks *et al.* [2005] favorisent la table 7592 de l’équation d’état SESAME [1992]. De plus, ce jeu de données ne montre pas de changement de pente du nuage de points, gommant toute trace de dissociation. Le jeu de données analysé avec la référence quartz utilisée par Hamel *et al.* [2012] fait apparaître un changement de pente du nuage de points et un bon accord avec QEOS dès que la compression excède $\approx 2,6$. Enfin, l’analyse des données disponibles avec le standard quartz de Knudson & Desjarlais [2013] donne le meilleur accord avec les simulations *ab initio*, aussi bien en pression qu’en température. Les données obtenues avec une référence en aluminium sont moins sensibles au changement de référence (Hicks *et al.* [2005] ou Knudson & Desjarlais [2015]) et sont également en bon accord avec les simulations *ab initio*, confirmant indirectement que la référence de Knudson & Desjarlais [2013] pour le quartz est à ce jour la plus pertinente.

Enfin, l’équivalence des données en compression associée aux équations d’état des références de Knudson & Desjarlais [2013, 2015] montre que la dissociation se produit pour $\rho/\rho_0 \sim 2,6 - 2,8$ quel que soit le matériau plastique considéré dans cette analyse. On peut alors en bonne approximation généraliser la modélisation d’équation d’état proposée dans 2.3.3 pour tous les matériaux ablateurs plastiques proches de ceux traités ici.

2.5 Conclusion

La prise en compte de la dissociation, mise en évidence par les calculs *ab initio* ainsi que par les résultats expérimentaux, a permis de faire évoluer les modèles d'équations d'état utilisés pour décrire les matériaux ablateurs des capsules de FCI.

Une perspective à court terme est de quantifier précisément l'influence de l'équation d'état sur la production neutronique de la capsule. Une telle étude sort du cadre de ce travail, puisqu'il faut intégrer cette information au sein d'une simulation globale qui doit également tenir compte de l'ensemble de la physique qui intervient dans le fonctionnement d'une cible à gain (couplage de la capsule avec la cavité, influence sur les instabilités hydrodynamiques...).

Dans un premier temps, nous pouvons cependant observer l'effet de l'équation d'état dans une simulation monodimensionnelle. Pour cela, nous avons utilisé le code d'hydrodynamique radiative CHIVAS et avons simulé l'irradiation de $500 \mu\text{m}$ de CH-GDP avec une loi de température radiative typique des expériences de FCI. Deux simulations, effectuées l'une avec le modèle QEOS, l'autre avec le modèle QSEM, donnent des résultats différents sur la chronométrie des chocs. La figure 2.19 montre des profils de pression extraits à $150 \mu\text{m}$ de profondeur, pour faire apparaître les premier et deuxième chocs ; et à $\sim 250 \mu\text{m}$ où a lieu la coalescence des chocs. Cette simulation montre des désaccords temporels importants lorsqu'on modifie l'équation d'état utilisée. En l'occurrence, les décalages constatés sont de ~ 300 ps sur la chronométrie des premier et deuxième chocs, et de ~ 600 ps sur la coalescence des chocs. Cette simulation est bien évidemment simpliste, puisqu'elle ne tient pas compte des effets de convergence, ni de la géométrie complexe d'une cible à gain. Cependant, les écarts constatés sont très en dehors des tolérances de fonctionnement de 50-100 ps sur la chronométrie des chocs d'une capsule de FCI.

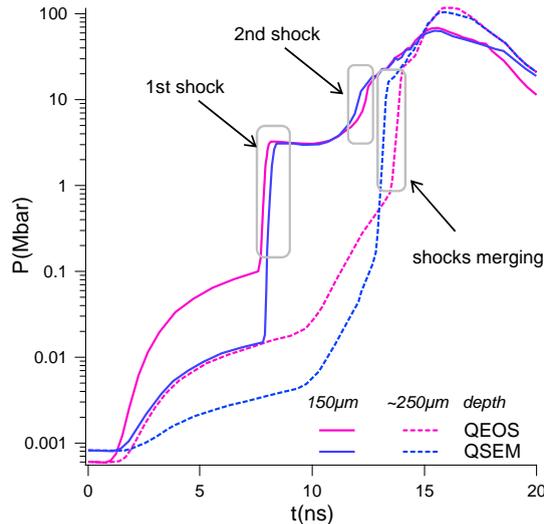


FIGURE 2.19 – Influence de l'équation d'état sur la chronométrie des chocs.

Chapitre 3

Propriétés électroniques

Au cours du chapitre précédent, nous avons mis en évidence l'influence des propriétés microscopiques ioniques sur des grandeurs macroscopiques telles les vitesses de choc dans une capsule de FCI. En poursuivant cette logique, l'étape suivante est de décrire les propriétés électroniques des matériaux ablateurs dans les conditions rencontrées au cours de la phase d'implosion. Du fait de la courte durée de vie des milieux en conditions WDM obtenus en laboratoire, il n'est à ce jour pas possible de décrire avec une grande précision la structure électronique des matériaux d'une capsule de FCI au cours de son fonctionnement. Il s'agit pourtant d'un point important car la connaissance des propriétés électroniques permet une détermination précise des coefficients de transport (conductivités électriques et thermiques) et des opacités spectrales qui sont des paramètres essentiels pour comprendre les mécanismes d'absorption du rayonnement par une capsule au cours de son implosion.

Idéalement, on souhaiterait connaître précisément le spectre d'absorption des ablateurs sur l'ensemble des conditions thermodynamiques rencontrées en FCI. Dans le régime d'un plasma dense proche du solide, cela reviendrait à tracer le diagramme des bandes d'énergie des électrons dans les conditions atteintes au cours des expériences menées sur les matériaux ablateurs. Rappelons que le diagramme de bandes est une représentation de la relation de dispersion $E(k)$ des électrons. Dans le cas d'un solide cristallin, on peut définir une maille primitive dans l'espace réciproque appelée première zone de Brillouin. Celle-ci possède un certain nombre de points de symétrie dénommés Γ , X, K, W, L... Le diagramme de bandes est obtenu en traçant la relation de dispersion $E(k)$ le long d'une trajectoire passant par ces points. Si on considère un gaz d'électrons libres (approximation du réseau vide), la relation de dispersion se réduit à la définition de l'énergie cinétique $E = \hbar k^2 / 2m$ et on obtient des branches de paraboles. Sur la figure 3.1, nous considérons le cas de l'aluminium dans les conditions normales, communément considéré comme un métal idéal : on constate en effet que la plupart des bandes d'énergie présentes sur la figure 3.1(b) adoptent des formes paraboliques. Par ailleurs, il existe des bandes approximativement parallèles de part et d'autre du niveau de Fermi, ce qui se traduit par une structure d'absorption à $\sim 1,5$ eV (Fig. 3.1(c)) correspondant à l'espacement en énergie entre ces deux bandes. La

connaissance précise du diagramme de bandes permet donc de décrire les propriétés optiques d'un milieu.

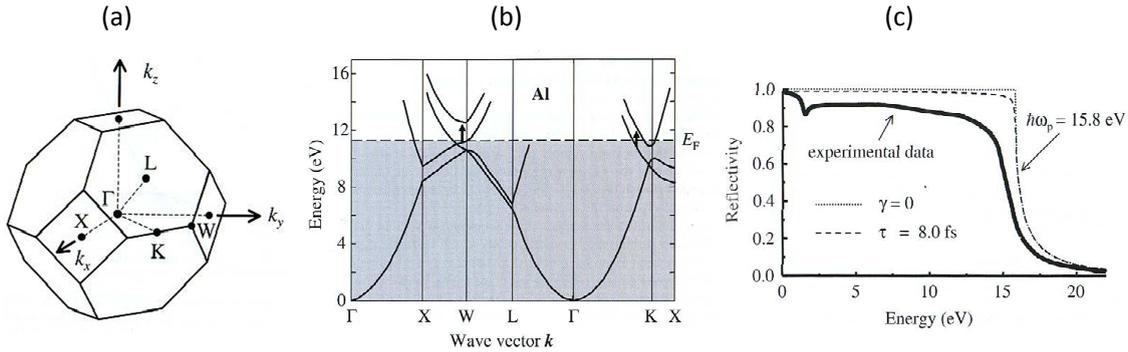


FIGURE 3.1 – Structure électronique de l'aluminium : (a) représentation de la première zone de Brillouin et de ses points de symétrie, (b) diagramme de bandes, (c) réflectivité de l'aluminium en fonction de l'énergie. Figures issues de [Fox 2001].

Dans le cas des plasmas denses, la caractérisation des propriétés électroniques a sans doute pris sa forme la plus aboutie lors d'expériences de mesure de conductivité électrique avec des canons à gaz [Nellis *et al.* 1999] ou des enceintes à plasma isochores [Renaudin *et al.* 2002, 2003]. De telles mesures sont rendues possibles grâce aux volumes de plasma générés en laboratoire, ainsi qu'à leur durée de vie. On est cependant encore loin des techniques de physique du solide qui permettent de caractériser la structure électronique avec des mesures de la surface de Fermi. Dans les expériences laser, les échelles de temps (de l'ordre de la nanoseconde) restreignent encore plus le champ des mesures possibles : on doit en général se contenter de la mesure de la réflectivité, extraite à partir de l'intensité des signaux VISAR¹. Cette observable est intéressante car liée aux propriétés électroniques du milieu sondé.

Tout comme pour les points de courbes d'Hugoniot, les mesures obtenues sur différents matériaux plastiques montrent des caractéristiques communes lorsqu'on considère la dépendance à la compression. Cependant, la réflectivité en tant qu'observable intègre un grand nombre de paramètres physiques ce qui complique son interprétation. Contrairement à la modélisation de l'équation d'état proposée dans le chapitre précédent, il n'existe pas à ce jour de modèle permettant de décrire l'ensemble des données de manière satisfaisante. Nous allons néanmoins tenter de décrire les propriétés électroniques à l'aide de plusieurs outils et de tirer quelques conclusions pour orienter les investigations futures.

1. La diffusion Thomson X, qui dépend de modèles extérieurs et qui est limitée aux éléments légers, ne sera pas abordée dans le cadre de ce mémoire

3.1 Réflectivité du front de choc

Comportement universel La transparence des matériaux étudiés aux longueurs d'onde des diagnostics VISAR nous permet d'accéder à la mesure de la réflectivité du front de choc. Ces données de réflectivité issues des analyses VISAR sont obtenues par rapport à des références. Cette référence peut être soit la réflectivité du choc dans le quartz², soit la réflectivité de la cible non perturbée lorsqu'elle est accessible. D'autres méthodes utilisant des références d'intensité et une calibration sur un miroir permettent de mesurer la réflectivité en absolu. Cependant, quelle que soit la méthode utilisée, la mesure de réflectivité est sensible à un grand nombre de paramètres expérimentaux (qualité du faisceau sonde, répétabilité de la mesure...) et est souvent entachée d'une erreur atteignant jusqu'à $\pm 15\%$. Il est alors important de disposer d'un grand nombre de mesures afin de réduire l'erreur fortuite inhérente à ce type de mesure.

Les données de réflectivité accumulées au cours des différentes campagnes montrent un comportement universel analogue à celui trouvé pour les données de courbes d'Hugoniot : tous les matériaux plastiques considérés présentent la même dépendance à la compression (Fig. 3.2).

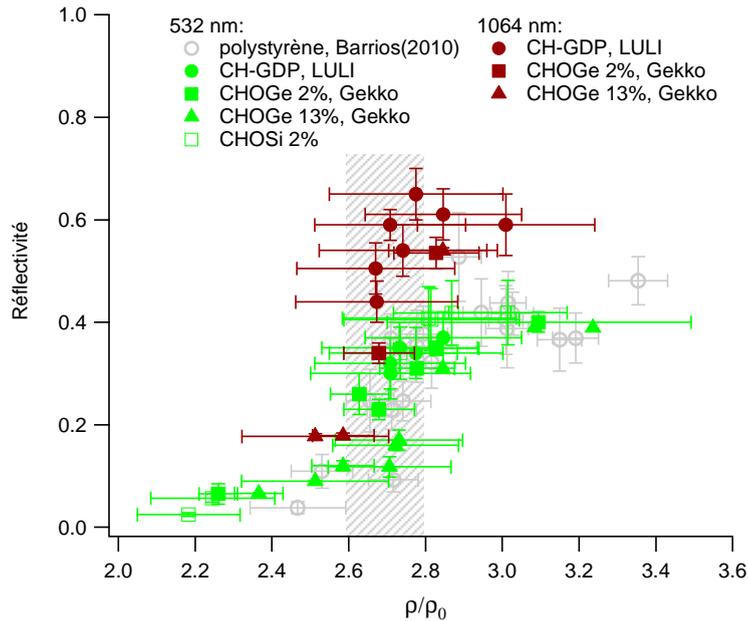


FIGURE 3.2 – Réflectivité du front de choc à 532 nm (symboles verts) et 1064 nm (symboles rouges) dans les différents ablateurs étudiés lors des campagnes menées à Gekko et au LULI. Les résultats sont superposés aux mesures à 532 nm de Barrios *et al.* [2010] sur le polystyrène (symboles gris). La zone hachurée en gris correspond à la gamme de compression sur laquelle a lieu la dissociation des liaisons C-C. Toutes les mesures de densité ont été obtenues en utilisant les références d'équation d'état de Knudson & Desjarlais [2013] et Knudson & Desjarlais [2015].

2. Celle-ci a été mesurée en absolu par ailleurs [Hicks *et al.* 2006, Huser *et al.* 2015]

Quel que soit l'ablateur considéré, le comportement de la réflectivité en fonction de la compression ne change pas : pour les compressions les plus faibles, le milieu est faiblement conducteur et la réflectivité ne dépasse pas $\sim 10\%$. Pour $\rho/\rho_0 \approx 2,7$ l'effet de la dissociation se manifeste très clairement et la réflectivité augmente brusquement et semble saturer à une valeur limite proche de 40% à 532 nm et 60% à 1064 nm. Les données suggèrent également que la présence de dopant n'a pas d'influence notable sur ce mécanisme, y compris dans le cas extrême du CHOGe dopé à 13% .

L'augmentation de la réflectivité en fonction de la compression sous choc a déjà été observée dans de nombreux matériaux transparents pour lesquels une mesure VISAR de la réflectivité était possible. Parmi ceux-ci, on peut citer le deutérium[Celliers *et al.* 2000], le fluorure de lithium et l'alumine[Hicks *et al.* 2003], l'eau[Celliers *et al.* 2004b], le quartz[Hicks *et al.* 2006] et le polystyrène[Barrios *et al.* 2010]. Dans l'ensemble de ces publications, l'augmentation de la réflectivité puis sa saturation le long de la courbe d'Hugoniot est interprétée comme une transition isolant-conducteur. Le changement de la réflectivité au cours de cette transition a été décrit par Hicks *et al.* [2003] à l'aide d'un modèle d'ajustement de fermeture du gap semi-conducteur. La saturation de la réflectivité visible, en général à des valeurs de 30 à 40% dans les conditions atteintes expérimentalement, montre qu'un état conducteur est obtenu, parfois qualifié d'état métallique.

Modélisation de la réflectivité Nous cherchons à décrire quantitativement l'évolution de la réflectivité en fonction de la compression à l'aide de différents modèles. Pour cela, commençons par exprimer la réflectivité d'un front de choc qui se propage dans un milieu transparent d'indice n_0 . Elle s'écrit :

$$R(\omega) = \frac{[n(\omega) - n_0(\omega)]^2 + [k(\omega) - k_0(\omega)]^2}{[n(\omega) + n_0(\omega)]^2 + [k(\omega) + k_0(\omega)]^2}, \quad (3.1)$$

où $n(\omega)$ et $k(\omega)$ sont les parties réelles et imaginaires de l'indice optique du front de choc et où 0 désigne le milieu dans son état initial. L'absorption initiale $k_0(\omega)$ mesurée dans les matériaux plastiques étudiés est de l'ordre de $\sim 10^{-4}$ et est négligée ici. L'indice complexe du milieu est défini à partir de la relation de dispersion d'une onde plane qui s'y propage et est lié à la fonction diélectrique complexe $\epsilon(\omega)$ qui décrit la réponse du milieu au champ électrique externe :

$$\epsilon(\tilde{\omega}) = \epsilon_1(\omega) + i\epsilon_2(\omega) = [n(\omega) + ik(\omega)]^2,$$

où $\epsilon_1(\omega)$ et $\epsilon_2(\omega)$ sont les parties réelles et imaginaires de la fonction diélectrique complexe. Par identification, on obtient l'expression de l'indice complexe en fonction de la fonction diélectrique :

$$n(\omega) = \frac{1}{\sqrt{2}} [\epsilon_1(\omega) + (\epsilon_1^2(\omega) + \epsilon_2^2(\omega))^{1/2}]^{1/2}, \quad (3.2)$$

$$k(\omega) = \frac{1}{\sqrt{2}} [-\epsilon_1(\omega) + (\epsilon_1^2(\omega) + \epsilon_2^2(\omega))^{1/2}]^{1/2} \quad (3.3)$$

Ces définitions issues de la théorie de l'électromagnétisme montrent que la modélisation de la réflectivité d'un front de choc se réduit à celle de la fonction diélectrique.

3.2 Le modèle de Drude et ses dérivés

Le modèle de Drude [1900] permet de donner une expression à la fonction diélectrique complexe pour un métal en calculant la réflectivité d'un gaz parfait d'électrons libres. Dans sa forme originale, ce modèle fait l'hypothèse des électrons quasi-libres, c'est-à-dire que tous les électrons de valence du milieu conducteur considéré sont libres. La réponse du gaz d'électrons libres à une excitation provoquée par un champ électrique extérieur $E(t) = E_0 e^{-i\omega t}$ peut être décrite par une équation du mouvement :

$$m_0 \frac{d^2 x}{dt^2} + m_0 \gamma \frac{dx}{dt} = -eE(t),$$

où m_0 est la masse de l'électron dans le vide et $\gamma = 1/\tau$ est un terme d'amortissement qui traduit le temps de réponse τ du gaz d'électrons libres à l'excitation par le champ électrique. Ce paramètre τ peut aussi être interprété comme un taux de collision. En supposant que la réponse est linéaire, on injecte $x = x_0 e^{-i\omega t}$ dans l'équation du mouvement, ce qui aboutit à :

$$x(t) = \frac{eE(t)}{m_0(\omega^2 + i\omega/\tau)},$$

où $\omega_p = \sqrt{n_e e^2 / (\epsilon_0 m_0)}$ est la fréquence plasma.

Pour exprimer la fonction diélectrique complexe, on part du déplacement électrique $D = \epsilon_r \epsilon_0 E = \epsilon_0 E + P$, où $P = -n_e E x$ est la polarisabilité. En injectant la trajectoire de l'électron $x(t)$, on obtient la fonction diélectrique complexe :

$$\epsilon(\tilde{\omega}) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\omega/\tau},$$

dont les parties réelles et imaginaires sont :

$$\epsilon_1(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2 \tau^2}{1 + \omega^2 \tau^2} \tag{3.4}$$

$$\epsilon_2(\omega) = \frac{\omega_p^2 \tau^2}{\omega(1 + \omega^2 \tau^2)}. \tag{3.5}$$

La description de la dynamique des électrons par une équation du mouvement permet également d'exprimer la conductivité électrique. Pour cela, on part de la densité de courant $J(t) = -n_e e v(t) = \sigma E(t)$. En se plaçant dans le régime linéaire, de sorte que $v(t) = v_0 e^{-i\omega t}$, puis en injectant cette expression de la vitesse dans l'équation du mouvement, on obtient une expression de la conductivité complexe :

$$\tilde{\sigma}(\omega) = \frac{\sigma_0}{1 - i\omega\tau},$$

où $\sigma_0 = n_e e^2 \tau / m_0$ est la conductivité électrique continue. Les parties réelles et imaginaires de la conductivité électrique complexe $\tilde{\sigma}(\omega)$ sont :

$$\sigma_1(\omega) = \frac{\sigma_0}{1 + \omega^2 \tau^2} \quad (3.6)$$

$$\sigma_2(\omega) = \frac{\sigma_0 \omega \tau}{1 + \omega^2 \tau^2}. \quad (3.7)$$

La fonction diélectrique peut alors être reliée à la conductivité électrique par :

$$\epsilon_1(\omega) = 1 - \frac{\sigma_2(\omega)}{\epsilon_0 \omega} \quad (3.8)$$

$$\epsilon_2(\omega) = \frac{\tau}{\epsilon_0 \omega} \sigma_1(\omega). \quad (3.9)$$

Le modèle de Drude permet donc de calculer la réflectivité et la conductivité électrique en fonction des paramètres du plasma d'électrons libres n_e et τ . La figure 3.3 résume le comportement de ce modèle en prenant l'exemple de l'aluminium dans les conditions normales. La forme de $R(\omega)$ est bien connue : celle-ci est proche de 1 pour $\omega < \omega_p$, puis chute rapidement pour $\omega > \omega_p$. On parle alors communément de la transparence UV des métaux. La conductivité réelle chute également lorsque la fréquence de collision est de l'ordre de celle du rayonnement incident et la partie imaginaire atteint son maximum : les électrons possèdent trop d'inertie pour suivre le champ électrique et restituer l'énergie incidente et le milieu devient absorbant.

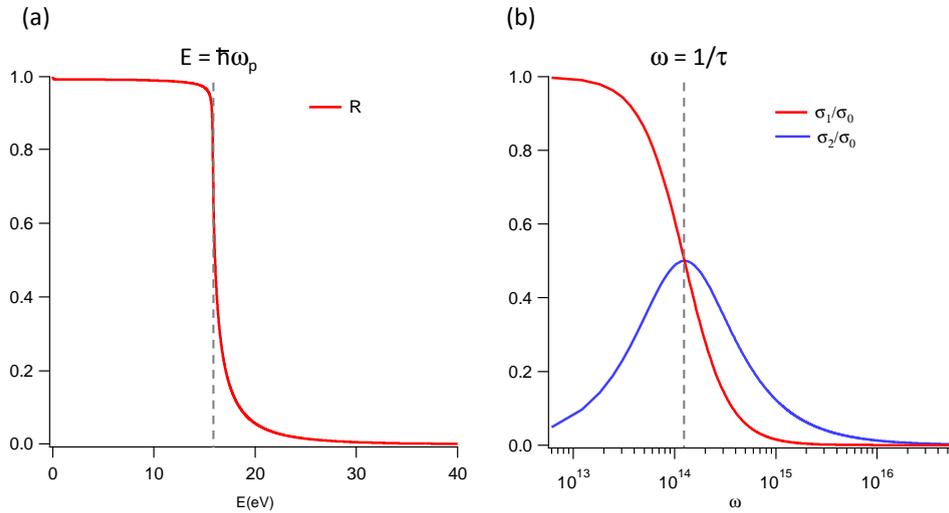


FIGURE 3.3 – (a) Réflectivité et (b) parties réelles et imaginaires de la conductivité électrique calculées dans le cadre du modèle de Drude pour l'aluminium avec $n_e = 1,81 \cdot 10^{29} \text{ m}^{-3}$ et $\tau = 8 \text{ fs}$.

Le modèle de Drude est facile à implémenter et fournit une représentation physique facile à comprendre, ce qui rend courante son utilisation dans la littérature. Pour renseigner les deux paramètres d'entrée du modèle de Drude n_e et τ , nous devons avoir recours à des approximations ou à l'utilisation de modèles extérieurs.

3.2.1 Modèle de Drude-Sommerfeld

Dans sa forme originale, le modèle de Drude est entièrement classique : la vitesse est donnée par la théorie des gaz parfaits ($\langle v_e \rangle = (3k_B T/m_e)^{1/2}$) et la densité électronique par le nombre d'électrons de valence. Le taux de collision est déduit de la mesure de la conductivité électrique continue dans le cas des métaux dans les conditions normales. Pour un plasma dense, il est pris à la limite de Ioffe & Regel [1960] $\tau_{IR} = d_i/\langle v_e \rangle$, où $\langle v_e \rangle$ est la vitesse moyenne des électrons et $d_i = 2(3/4\pi n_i)^{1/3}$ est la distance moyenne entre les ions. Notons que calculer exactement le taux de collision nécessite de disposer d'une description cinétique du milieu qui permette d'établir la fonction de distribution en énergie des électrons : c'est en perturbant la fonction de distribution *via* l'équation de Boltzmann que l'on peut ensuite exprimer formellement le taux de collision électronique. Les modèles basés sur la théorie de Drude font tous l'hypothèse d'un gaz parfait d'électrons libres et par définition ne donnent qu'une vision simplifiée de la cinétique des électrons.

Le modèle de Drude original peut être amélioré avec la théorie de Sommerfeld pour laquelle la vitesse moyenne des électrons ne dépend que de la densité selon la vitesse de Fermi $v_F = \frac{\hbar}{m_e}(3\pi^2 n_e)^{1/3}$. La densité électronique est alors le paramètre à ajuster dans ce modèle, dit de Drude-Sommerfeld, pour restituer des mesures de réflectivité et ainsi estimer l'ionisation moyenne [Celliers *et al.* 2000, Koenig *et al.* 2003, Huser *et al.* 2015].

3.2.2 Ionisation de Thomas-Fermi par la pression

More [1985] a calculé l'ionisation induite par la pression dans le cadre de la théorie de Thomas-Fermi Z_{TF}^* . La densité électronique est alors $n_e = Z_{TF}^* n_i$ et Z_{TF}^* est donnée par une formule analytique qui dépend de A , Z , ρ et T . Cependant, cette théorie a pour but la description de plasmas denses et chauds dans lesquels a lieu un abaissement du continuum qui a pour effet de libérer des orbites fermées des ions. De plus, comme nous l'avons vu dans la section précédente, lorsque ce modèle est extrapolé à nos conditions expérimentales, la pression électronique est surestimée par le modèle QEOS, qui est valide pour des températures supérieures à ~ 10 eV [More *et al.* 1988]. Cela se traduit par une ionisation très proche du numéro atomique moyen et une réflectivité qui surestime les données expérimentales. La différence entre l'ionisation de Thomas-Fermi et celle déduite du modèle de Drude-Sommerfeld a été calculée pour le plastique dopé au germanium et peut atteindre jusqu'à un facteur ~ 10 (Fig. 3.4).

3.2.3 Modèle de fermeture du gap semi-conducteur

Dans ce modèle, établi par Hicks *et al.* [2003], l'augmentation de la réflectivité d'un isolant le long de la courbe d'Hugoniot est modélisée en considérant les propriétés des électrons dans un semi-conducteur intrinsèque. Dans son état initial, la structure électronique du milieu possède un gap en énergie (ou bande interdite) suffisamment important pour décrire un isolant. Lors d'une compression par choc, les températures

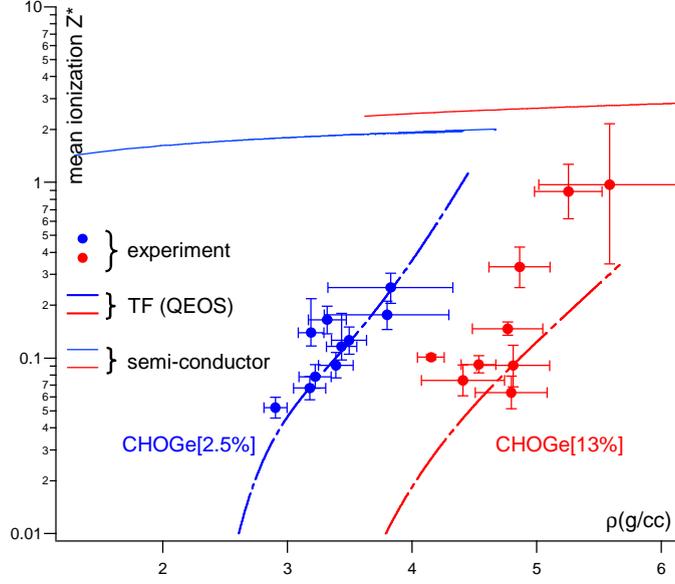


FIGURE 3.4 – Ionisation moyenne le long de l’Hugoniot pour le plastique dopé au germanium à 2,5% (bleu) et 13% (rouge). Estimation à partir du modèle de Drude-Sommerfeld (points) comparée à l’ionisation calculée dans le cadre de la théorie de Thomas-Fermi (courbes pleines) et à l’aide d’un modèle de fermeture du gap semi-conducteur (tirets), décrit ci-dessous.

atteintes provoquent un étalement de la fonction de Fermi-Dirac suffisant pour que la bande de conduction soit peuplée par activation thermique, et ce mécanisme est catalysé par la fermeture progressive du gap sous l’effet de la densité qui augmente. L’énergie du gap est une fonction décroissante de la densité $E_g = a - b\rho$. La densité et la vitesse moyenne des électrons sont données par :

$$n_e = 2 \left(\frac{m_e k_B T}{2\pi \hbar^2} \right)^{3/2} F_{1/2}(-E_g/2k_B T)$$

$$\langle v_e \rangle = \left(\frac{2k_B T}{m_e} \frac{F_{3/2}(-E_g/2k_B T)}{F_{1/2}(-E_g/2k_B T)} \right)^{1/2},$$

où $F_{1/2}$ et $F_{3/2}$ sont les intégrales de Fermi de forme générale $F_m(\eta) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^\infty \frac{x^m dx}{1 + \exp(x - \eta)}$. Ces quantités ne dépendent que de la température, dont la dépendance à la densité est ajustée sur les mesures (Fig. 2.16(b)). Le taux de collisions électron-ion est pris proche de la limite de Ioffe-Regel $\tau = \gamma \tau_{IR}$ où γ est un paramètre proche de 1. La fréquence plasma est calculée en attribuant une masse effective $m^* = m_e/2$ pour tenir compte des paires électrons-trous dans un semi-conducteur intrinsèque.

L’ajustement sur les mesures de réflectivité en fonction de la densité est fait au sens des moindres carrés et les paramètres sont ceux décrivant la fermeture du gap (a et b) et le facteur γ . L’augmentation de la réflectivité le long de l’Hugoniot prévue par ce modèle est essentiellement due à l’activation thermique des électrons et à leur diffusion sur les ions. Lorsqu’on ajuste des données expérimentales avec ce modèle, c’est

essentiellement la forme de la courbe d'Hugoniot dans le plan température-densité et le coefficient γ qui sont déterminants. Le mécanisme de fermeture du gap, décrit par les coefficients a et b , n'est pas décrit avec une grande précision : plusieurs jeux de coefficients a et b permettent d'ajuster les données expérimentales, une fois les autres paramètres du modèle fixés.

Pour l'ensemble des données expérimentales, il est possible d'ajuster ce modèle sur la phase de montée de la réflectivité le long de l'Hugoniot (Fig. 3.5 (a)). On trouve des énergies de gap de l'ordre de 2-4 eV lorsque la réflectivité augmente en fonction de la compression par choc. Ce résultat est raisonnable, puisque l'énergie du gap pour un matériau plastique dans les conditions normales est de l'ordre de 6-7 eV [Ohki *et al.* 2010]. De plus, les valeurs prises par le paramètre γ pour restituer les données expérimentales sont comprises entre 1 et 2, ce qui est proche de l'hypothèse de Ioffe & Regel [1960].

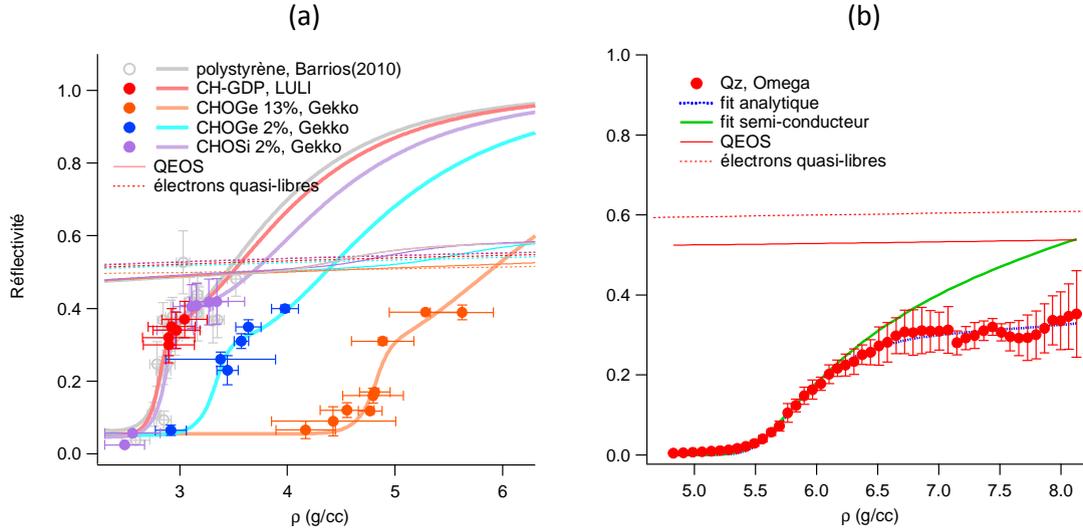


FIGURE 3.5 – Modèle de fermeture du gap semi-conducteur calculé dans le cas (a) des plastiques ablateurs, (b) du quartz (données issues de Hicks *et al.* [2006]). Les courbes en traits fins désignent la réflectivité de Drude à la limite de Ioffe & Regel [1960] calculée dans le cadre de la théorie QEOS (traits continus) et dans l'hypothèse des électrons quasi-libres (traits pointillés).

Lorsque le gap se ferme, ce modèle est mathématiquement encore valide et permet même des valeurs négatives du gap à cause de la fonction exponentielle contenue dans les intégrales de Fermi. Lors de la publication de ce modèle, Hicks *et al.* [2003] a considéré qu'une fois le gap fermé, ce modèle adoptait alors un comportement de type métal de Sommerfeld. Cependant, lorsque le milieu devient métallique, la diffusion des électrons ne s'opère plus de la même manière que dans un semi-conducteur et le paramètre γ n'a plus de sens physique. Notons qu'il existe une version ultérieure de ce modèle [Celliers *et al.* 2004b] qui fixe le taux de collision à la limite de Ioffe & Regel

[1960] et affecte le paramètre d'ajustement γ à la masse effective de l'électron, afin de mieux rendre compte du caractère semi-conducteur du milieu. Cependant, lorsque le gap se ferme, cette méthode perd également son sens physique puisqu'il n'existe alors plus de paires électrons-trous pour justifier le concept de masse effective.

3.2.4 Saturation de la réflectivité

La figure 3.2 montrée en début de chapitre indique que la saturation de la réflectivité sous choc est concomitante de la dissociation totale des mélanges considérés. Cependant, les différents modèles que nous venons d'examiner ne permettent pas d'expliquer la valeur de la réflectivité atteinte en phase de saturation.

Sur la figure 3.5, nous avons également tracé la réflectivité de Drude à la limite de Ioffe & Regel [1960] calculée dans le cadre de la théorie QEOS et dans l'hypothèse des électrons quasi-libres, c'est à dire en considérant que tous les électrons de valence contribuent à la conduction électrique. Dans les deux cas, on voit que ces régimes donnent des valeurs limites proches de 0,5 et surestiment de $\sim 25\%$ de la valeur de saturation mesurée expérimentalement proche de 0,4. Les données expérimentales suggèrent donc qu'une partie des électrons de valence reste localisée près des noyaux atomiques lorsque la dissociation est complète. Cette conclusion diffère de celle donnée par Celliers *et al.* [2000] qui ont réalisé des mesures de réflectivité sur le deutérium liquide sous choc, et qui considèrent que saturation est due à la dissociation du D_2 , produisant un électron délocalisé pour chaque monomère.

De même, la validité du modèle semi-conducteur est mise en défaut lorsqu'il s'agit de décrire la saturation de la réflectivité. Sur la figure 3.5(a), l'augmentation de la réflectivité lors de la transition isolant-conducteur est par définition bien restituée, mais pas la phase de saturation lorsque la fermeture du gap est atteinte. Comme les données obtenues sur les matériaux plastiques sont relativement limitées en compression, il n'est pas forcément évident d'y déceler une phase de saturation. Pour appuyer notre argument, nous avons également utilisé le modèle semi-conducteur pour ajuster les données du quartz sous choc publiées par Hicks *et al.* [2006] qui s'étendent à des densités plus importantes et montrent plus clairement la saturation de la réflectivité une fois le régime conducteur obtenu (Fig. 3.5(b)). La conclusion est la même que pour les ablateurs plastiques : la phase de saturation n'est pas restituée à cause du comportement de type Drude-Sommerfeld adopté par ce modèle dans ces conditions.

3.3 Calcul de la structure électronique

Les modèles simples que nous venons de décrire permettent d'obtenir une représentation des propriétés électroniques des ablateurs plastiques comprimés, mais au prix de l'approximation du gaz d'électrons libres, laquelle ne tient pas compte des caractéristiques du milieu environnant. Les simulations *ab initio* présentées au chapitre précédent font une hypothèse très proche quant aux propriétés électroniques, puisque l'énergie des électrons n'est évaluée qu'au point Γ de la zone de Brillouin. Lorsqu'on

calcule une équation d'état, on cherche à obtenir des valeurs moyennes (cf. équation 2.2) et cette hypothèse est en général suffisante³, car on cherche à calculer l'énergie totale des électrons ainsi que les forces exercées sur les ions.

Pour calculer la structure électronique, on fait à nouveau appel à la simulation *ab initio* en sélectionnant une dizaine de configurations ioniques dans la partie convergée du calcul des trajectoires utilisées pour déterminer les grandeurs thermodynamiques. Chacune de ces configurations est alors utilisée dans un calcul de DFT statique pour lequel l'échantillonnage des points-k est augmenté à $2 \times 2 \times 2$ selon le schéma de Monkhorst & Pack [1976]. Cet échantillonnage reste insuffisant pour tracer un diagramme de bandes tel que décrit dans l'introduction de ce chapitre. Dans les systèmes que nous étudions, contenant 250 noyaux atomiques et quelques milliers d'électrons, un échantillonnage plus resserré conduirait à des temps de calculs prohibitifs. Cependant, ce type de calcul permet d'accéder aux densités d'états électroniques ainsi qu'aux conductivités.

3.3.1 Densités d'états électroniques

Les calculs statiques effectués sur une grille de $2 \times 2 \times 2$ points-k permettent d'afficher la densité d'états électroniques du milieu simulé. La figure 3.6 montre un exemple de ces calculs effectués pour le CH dopé au germanium [Huser *et al.* 2015]. Nous y avons comparé les densités d'états et les occupations⁴ obtenues par le calcul statique de DFT et dans le cas du modèle de fermeture du gap semi-conducteur.

Le modèle semi-conducteur considère la coexistence de deux gaz d'électrons libres : l'un situé énergétiquement dans la bande de valence, l'autre dans la bande de conduction. Ces deux ensembles sont séparés par la bande interdite au milieu de laquelle on définit l'énergie de Fermi et leurs densités d'états respectives suivent une dépendance en \sqrt{E} . Le calcul de la réflectivité se fait dans le cadre du modèle de Drude, dans lequel la densité électronique est donnée par l'intégrale de la fonction d'occupation dans la bande de conduction. Le taux de collision (ou de manière équivalente, comme mentionné précédemment, la masse effective des électrons) est ajusté de façon à restituer au mieux les données expérimentales.

Le calcul statique de DFT produit des résultats sensiblement différents. Tout d'abord, pour les deux taux de dopant étudiés, apparaît un pic à ~ 25 eV en-dessous de l'énergie de Fermi qui est dû aux électrons $3d$ du germanium. L'amplitude de ce pic permet de montrer que la plupart de ces électrons restent localisés près du coeur. Seuls les électrons $4d$ (à 3,89 eV sous l'énergie de Fermi) sont délocalisés et contribuent à la conduction électrique. Une autre caractéristique remarquable du calcul DFT est la description du gap. Contrairement au modèle semi-conducteur qui considère une zone interdite totalement vide, le calcul DFT décrit un pseudo-gap dans les conditions simulées le long de la courbe d'Hugoniot. Ce pseudo-gap correspond à une déplétion

3. Des tests de convergence sur le nombre de points-k sont effectués en guise de vérification de cette hypothèse.

4. L'occupation est le produit de la densité d'états par la fonction de distribution de Fermi-Dirac.

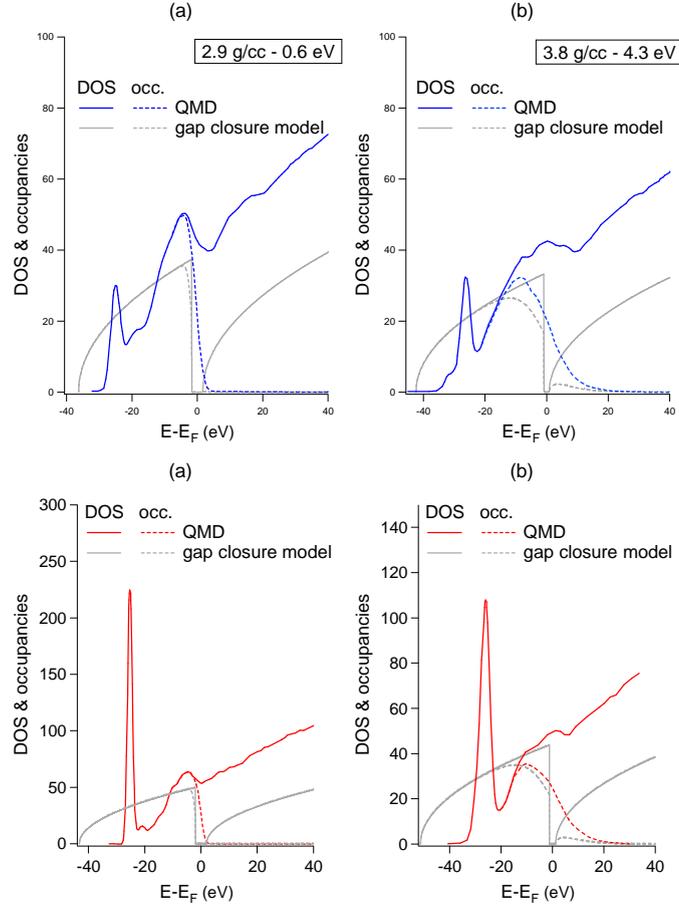


FIGURE 3.6 – Densités d'états et états occupations électroniques pour le CHOGe dopé à 2,5% (bleu) et à 13% (rouge), comparées au modèle semi-conducteur (gris).

de la densité d'états autour de l'énergie de Fermi, et non pas à un dépeuplement total de cette région.

Pour les conditions considérées le long de l'Hugoniot, le calcul DFT décrit un conducteur avec des valeurs de l'intégrale de la fonction d'occupation au-dessus du niveau de Fermi, c'est à dire du nombre d'électrons de conduction, de l'ordre de 10^1 à 10^2 . Le modèle semi-conducteur prédit des valeurs beaucoup plus faibles, entre 10^{-4} à 10^1 , mais les électrons de conduction décrits par ce modèle sont de nature différente, puisqu'ils possèdent une masse effective $m^* = m_e/2$.

3.3.2 Formalisme de Kubo-Greenwood

La connaissance de la densité d'états électroniques est essentielle pour déterminer les coefficients de transport, comme le montre la règle d'or de Fermi

$$W_{if} = \frac{2\pi}{\hbar} |M|^2 g(E),$$

où W_{if} est le taux de transition entre les états i et f , $|M|$ est l'élément de matrice de transition et $g(E)$ est la densité d'états.

La formule de Kubo [1957] et Greenwood [1958] est très proche de la règle d'or de Fermi et permet de calculer les propriétés optiques à partir des calculs *ab initio*. Pour chacune des configurations utilisées pour le calcul de la structure électronique, la partie réelle de la conductivité optique est donnée par :

$$\sigma_1(\omega) = \frac{2\pi}{3\omega V} \sum_{\mathbf{k}} W(\mathbf{k}) \sum_{j=1}^{N_B} \sum_{i=1}^{N_B} \sum_{\alpha=1}^3 [f(\epsilon_{i,\mathbf{k}}) - f(\epsilon_{j,\mathbf{k}})] \times |\langle \Psi_{j,\mathbf{k}} | \nabla_{\alpha} | \Psi_{i,\mathbf{k}} \rangle|^2 \delta(\epsilon_{j,\mathbf{k}} - \epsilon_{i,\mathbf{k}} - \omega) \quad (3.10)$$

en unités atomiques. Ici $W(\mathbf{k})$ est un poids statistique dans la zone de Brillouin utilisé par le schéma de Monkhorst-Pack. Les sommes sur i et j sont faites sur les N_B états propres discrets de Kohn-Sham. La somme sur α moyenne les trois directions et V est le volume simulé. $f(\epsilon_{i,\mathbf{k}})$ est la fonction de distribution de Fermi et décrit l'occupation de la i -ème bande d'énergie $\epsilon_{i,\mathbf{k}}$ et de fonction d'onde $\Psi_{i,\mathbf{k}}$ at \mathbf{k} . Enfin, la fonction δ est élargie afin d'éliminer les oscillations du spectre liées au volume fini de la simulation [Desjarlais *et al.* 2002].

La partie imaginaire de la conductivité σ_2 peut alors se déduire de σ_1 avec la relation de Kramers-Kronig :

$$\sigma_2(\omega) = -\frac{2}{\pi} P \int \frac{\sigma_1(\nu)\omega}{(\nu^2 - \omega^2)} d\nu \quad (3.11)$$

où P est la partie principale de l'intégrale sur σ_1 . On peut alors injecter le résultat dans (3.8), puis dans l'expression de la réflectivité (3.1). Ce calcul est effectué sur plusieurs configurations convergées (une dizaine) afin de réduire l'incertitude en augmentant la statistique.

Cette méthode de calcul de la réflectivité est la seule permettant de rendre compte de la saturation observée pour les compressions les plus élevées. En effet, la partie réelle de la conductivité électrique est très piquée autour de l'énergie de Fermi à cause du terme $[f(\epsilon_{i,\mathbf{k}}) - f(\epsilon_{j,\mathbf{k}})]$, de sorte que la conduction électrique est principalement due aux électrons situés dans cette gamme d'énergie. Lorsque l'on considère la forme de la densité d'état dans cette région, nous venons de voir qu'il s'y trouve un pseudo-gap qui se remplit très vite dès que l'on se déplace sur l'Hugoniot dans les conditions explorées expérimentalement (Fig. 3.7 (a)). Lorsque la dissociation est complète, le pseudo-gap se remplit et la densité d'état au voisinage de l'énergie de Fermi ne varie pratiquement plus lorsqu'on se déplace sur des états plus chauds sur l'Hugoniot, ce qui explique la saturation de la réflectivité. La figure 3.7 (b) montre la partie réelle de la conductivité électrique dans les mêmes conditions. Le pseudo-gap observé sur les densités d'états se manifeste par une forte réduction de la conductivité électrique aux basses fréquences par rapport à un comportement de type Drude. Lorsque la dissociation a lieu et que le gap se remplit, la conductivité réelle se rapproche d'un comportement de type Drude et ne dépend que très faiblement des conditions sur l'Hugoniot.

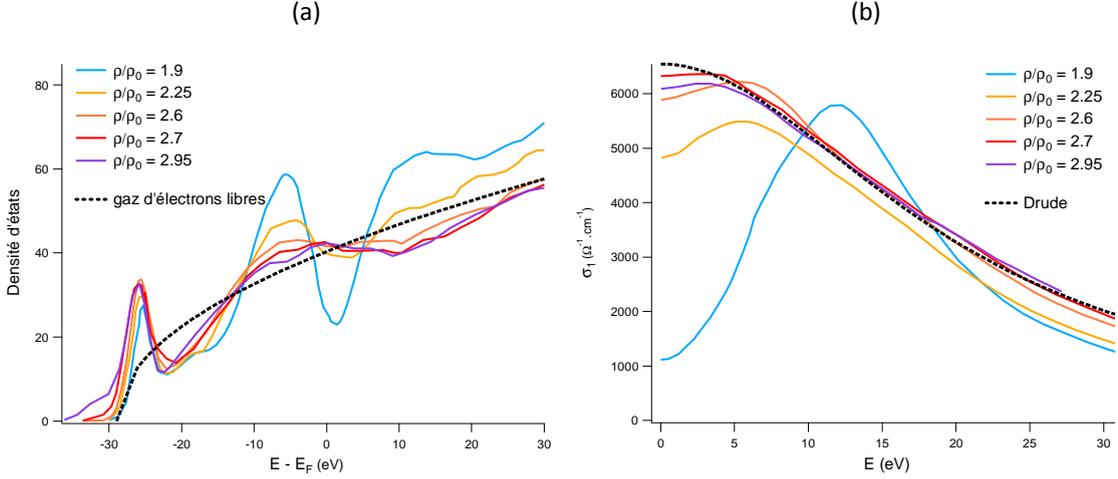


FIGURE 3.7 – (a) Remplissage du pseudo-gap autour de l'énergie de Fermi et (b) partie réelle de la conductivité électrique le long des conditions d'Hugoniot. Les courbes en pointillés noirs indiquent le comportement d'un gaz d'électrons libres dans les conditions $\rho/rho_0 = 2, 7$ sur l'Hugoniot.

La figure 3.8 reprend les données de réflectivité compilées dans la figure 3.2 sur laquelle nous avons superposé des calculs de réflectivité obtenus avec la formule de Kubo-Greenwood. On voit que si cette dernière permet de bien restituer la saturation de la réflectivité aussi bien à 532 que 1064 nm, elle prévoit néanmoins une transition isolant-conducteur à des compressions sensiblement inférieures à ce qui est observé dans l'expérience. Des écarts similaires entre le calcul de Kubo-Greenwood et les valeurs expérimentales à des conditions sur l'Hugoniot pour lesquelles la dissociation n'est pas complète ont déjà été observés dans des fluides moléculaires tels l'hydrogène[Collins *et al.* 2001], l'azote liquide[Mazevet *et al.* 2003] ou le quartz[Laudernet *et al.* 2004]. Ces écarts sont souvent attribués à l'absence de connaissance exacte du potentiel d'échange-corrélation utilisé dans la théorie DFT.

En dépit de ses limites, la dynamique moléculaire quantique associée au calcul de Kubo-Greenwood est la méthode qui est actuellement la plus complète pour décrire l'évolution des propriétés électroniques le long de l'Hugoniot de systèmes complexes tels les matériaux ablateurs utilisés pour la fusion par confinement inertiel. En particulier, cet ensemble d'outils théoriques et numériques permet d'associer la dissociation de fluides moléculaires à l'augmentation de la réflectivité et donc de la conductivité électrique.

Pour répondre aux questions soulevées par la physique de la capsule, les études présentées dans ce chapitre doivent être prolongées. Dans un premier temps, les calculs de densités d'état peuvent être affinés par des calculs de densités d'états projetées qui permettront de connaître les contributions aux propriétés électroniques des différents éléments présents dans les mélanges considérés. A plus long terme, il serait intéressant d'utiliser les outils présentés dans ce chapitre pour générer des tables d'opacités à

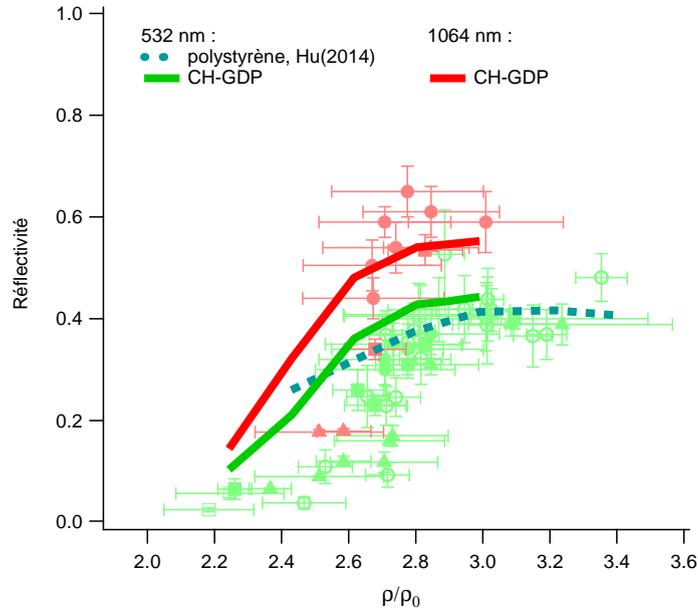


FIGURE 3.8 – Calculs Kubo-Greenwood de la réflectivité à 532 et 1064 nm comparés aux données expérimentales.

tester dans des simulations hydrodynamiques. C'est ce qu'a déjà entrepris Hu *et al.* [2014b] pour l'opacité du deutérium. Une étude similaire pourrait être appliquée aux matériaux plastiques traités dans le cadre de ce travail, en mettant l'accent sur le régime de températures de l'ordre de la dizaine d'eV, obtenues sur l'installation Omega dans les expériences d'instabilités hydrodynamiques (cf. (1.5)) et rencontrées lors de la phase d'implosion dans les expériences de FCI.

Conclusion

Les différentes études exposées dans ce document démontrent l'utilité de concilier plusieurs approches pour résoudre les problèmes de physique fondamentale posés dans le cadre du fonctionnement d'une capsule de FCI. D'un point de vue expérimental, il est crucial de poursuivre des expériences laser à différentes échelles. Les grandes installations comme Omega sont en constante amélioration, tant au niveau des performances laser qu'à celui des diagnostics disponibles. Elles permettent d'obtenir des mesures de qualité pour étudier des phénomènes aussi complexes que les instabilités hydrodynamiques dans des conditions extrêmes. Cependant, le degré d'intégration et la complexité intrinsèque de ces expériences soulèvent à leur tour des questions plus fondamentales comme les propriétés microscopiques des milieux étudiés. C'est là où les installations de plus petite taille comme LULI2000 ou Gekko jouent un rôle fondamental pour répondre à ces questions. Leur souplesse d'utilisation et leurs particularités au niveau des diagnostics, qui parfois nécessitent plusieurs semaines de réglage, permet d'y exécuter des expériences avec une flexibilité qui n'existe pas sur les grands laser tels Omega, le LMJ ou le NIF.

Du fait de la complexité des phénomènes rencontrés dans les conditions de la FCI, la théorie et l'expérimentation numérique jouent également un rôle prépondérant. Au cours des deux dernières décennies, on a ainsi pu voir la dynamique moléculaire quantique (initialement conçue pour traiter des problèmes de physique du solide et de chimie quantique) investir le champ de l'étude des plasmas chauds. Cette branche de la simulation est devenue incontournable pour alimenter les données d'entrée des codes d'hydrodynamique radiative. En parallèle, le développement continu des moyens de calculs permet à de plus en plus de monde au sein de la communauté scientifique de disposer de ces outils de simulation. Si ces derniers sont extrêmement performants, ils sont également extrêmement complexes et il est courant de leur prêter une confiance aveugle sans en maîtriser l'ensemble du fonctionnement. C'est ce qu'on peut parfois constater avec de jeunes étudiants qui manquent parfois de recul, mais également avec des chercheurs plus expérimentés. L'utilisation de ces outils aux performances quasi miraculeuses nécessite une parfaite connaissance des derniers... il est également souvent utile de lire (et relire) certains ouvrages de référence, et de refaire certains calculs armé d'un seul crayon et d'une feuille de papier.

La fusion par confinement inertiel par laser n'a pas encore été démontrée et de nombreuses questions restent en suspens. A une échelle beaucoup plus modeste, ce document a exposé quelques-unes des questions soulevées par les études de FCI et n'y

a répondu que de manière très partielle. Les résultats présentés donnent cependant une vision un peu plus claire des études à poursuivre. En ce qui concerne les équations d'état, les études entamées doivent être poursuivies jusqu'à des pressions de l'ordre de la centaine de Mbar afin de couvrir l'ensemble du chemin thermodynamique parcouru par une capsule de FCI au cours de son implosion. A ce jour, seules des données obtenues par radiographie sur Nova [Cauble *et al.* 1997] approchent ce domaine, mais sont entachées de barres d'erreur très importantes. L'amélioration des diagnostics permettra sans aucun doute d'obtenir des mesures de meilleure qualité et de faire progresser les modèles.

L'apport de ces études sur les équations d'état est fondamental pour comprendre la chronométrie des chocs dans une capsule, qui est aujourd'hui encore est réglée empiriquement. De telles expériences de chronométrie des chocs dans l'ablateur doivent également être poursuivies. Leur conception repose sur une bonne connaissance de l'équation d'état, mais aussi des propriétés électroniques. En effet, ces expériences utilisent un diagnostic VISAR qui est très sensible aux phénomènes d'opacification dans le domaine visible rencontrés dans les échantillons transparents irradiés par une cavité de conversion. Enfin, ces études pourront à leur tour alimenter des expériences plus intégrées dans lesquelles nous chercherons à limiter la croissance d'instabilités hydrodynamiques à l'aide de structures complexes similaires au gradient de dopant présenté en début de ce document.

Bibliographie

- AGLITSKIY, Y., VELIKOVICH, A. L., KARASIK, M., SERLIN, V., PAWLEY, C. J., SCHMITT, A. J., OBENSCHAIN, S. P., MOSTOVYCH, A. N., GARDNER, J. H. & METZLER, N. (2001). *Direct observation of feedout-related mass oscillations in plastic targets*. Phys. Rev. Lett. **87**, p. 265002.
- BARNES, J. F. (1967). *Statistical atom theory and the equation of state of solids*. Phys. Rev. **153**, p. 269–275.
- BARRIOS, M. A., BOEHLY, T. R., HICKS, D. G., FRATANDUONO, D. E., EGGERT, J. H., COLLINS, G. W. & MEYERHOFER, D. D. (2012). *Precision equation-of-state measurements on national ignition facility ablator materials from 1 to 12 mbar using laser-driven shock waves*. Journal of Applied Physics **111**, no. 9, p. 093515.
- BARRIOS, M. A., HICKS, D. G., BOEHLY, T. R., FRATANDUONO, D. E., EGGERT, J. H., CELLIERS, P. M., COLLINS, G. W. & MEYERHOFER, D. D. (2010). *High-precision measurements of the equation of state of hydrocarbons at 1–10 mbar using laser-driven shock waves*. Physics of Plasmas **17**, no. 5, p. 056307.
- BAYER, C. & JURASZEK, D. (2002). *Physique des plasmas thermonucléaires : la fusion par confinement inertiel*. Rapport technique CEA-R-5988, CEA.
- BETTI, R., GONCHAROV, V. N., MCCRORY, R. L. & VERDON, C. P. (1998). *Growth rates of the ablative rayleigh–taylor instability in inertial confinement fusion*. Physics of Plasmas **5**, no. 5, p. 1446–1454.
- BOEHLY, T., BROWN, D. L., CRAXTON, R. S., KECK, R. L., KNAUER, J. P., KELLY, J. H., KESSLER, T. J., KUMPAN, S. A., LOUCKS, S. J., LETZRING, S. A., MARSHALL, F. J., MCCRORY, R. L., MORSE, S. F. B., SEKA, W., SOURES, J. M. & VERDON, C. P. (1997). Opt. Commun. **133**, p. 495.
- BOEHLY, T. R., GONCHAROV, V. N., SEKA, W., HU, S. X., MAROZAS, J. A., MEYERHOFER, D. D., CELLIERS, P. M., HICKS, D. G., BARRIOS, M. A., FRATANDUONO, D. & COLLINS, G. W. (2011). *Multiple spherically converging shock waves in liquid deuterium*. Physics of Plasmas **18**, no. 9, p. 092706.
- BRADLEY, D. K., BRAUN, D. G., GLENDINNING, S. G., EDWARDS, M. J., MILOVICH, J. L., SORCE, C. M., COLLINS, G. W., HAAN, S. W., PAGE, R. H.,

- WALLACE, R. J. & KAAE, J. L. (2007). *Very-high-growth-factor planar ablative rayleigh-taylor experiments*. *Physics of Plasmas* **14**, no. 5, p. 056313.
- BUDIL, K. S., REMINGTON, B. A., PEYSER, T. A., MIKAEIAN, K. O., MILLER, P. L., WOOLSEY, N. C., WOOD-VASEY, W. M. & RUBENCHIK, A. M. (1996). *Experimental comparison of classical versus ablative rayleigh-taylor instability*. *Phys. Rev. Lett.* **76**, no. 24, p. 4536–4539.
- CASNER, A., CAILLAUD, T., DARBON, S., DUVAL, A., THFOUIN, I., JADAUD, J., LEBRETON, J., REVERDIN, C., ROSSE, B., ROSCH, R., BLANCHOT, N., VILLETTE, B., WROBEL, R. & MIQUEL, J. (2015). *Lmj/petal laser facility : Overview and opportunities for laboratory astrophysics*. *High Energy Density Physics* **17**, p. 2–11. cited By 2.
- CASNER, A., GALMICHE, D., HUSER, G., JADAUD, J.-P., LIBERATORE, S. & VANDENBOOMGAERDE, M. (2009). *Indirect drive ablative rayleigh-taylor experiments with rugby hohlraums on omega*. *Physics of Plasmas* **16**, no. 9, p. 092701.
- CAUBLE, R., SILVA, L. B. D., PERRY, T. S., BACH, D. R., BUDIL, K. S., CELLIERS, P., COLLINS, G. W., NG, A., BARBEE, T. W., JR., HAMMEL, B. A., HOLMES, N. C., KILKENNY, J. D., WALLACE, R. J., CHIU, G. & WOOLSEY, N. C. (1997). *Phys. Plasmas* **4**, p. 1857.
- CELLIERS, P. M., BRADLEY, D. K., COLLINS, G. W., HICKS, D. G., BOEHLY, T. R. & ARMSTRONG, W. J. (2004a). *Line-imaging velocimeter for shock diagnostics at the omega laser facility*. *Review of Scientific Instruments* **75**, no. 11, p. 4916–4929.
- CELLIERS, P. M., COLLINS, G. W., DA SILVA, L. B., GOLD, D. M., CAUBLE, R., WALLACE, R. J., FOORD, M. E. & HAMMEL, B. A. (2000). *Shock-induced transformation of liquid deuterium into a metallic fluid*. *Phys. Rev. Lett.* **84**, p. 5564–5567.
- CELLIERS, P. M., COLLINS, G. W., HICKS, D. G., KOENIG, M., HENRY, E., BENUZZI-MOUNAIX, A., BATANI, D., BRADLEY, D. K., SILVA, L. B. D., WALLACE, R. J., MOON, S. J., EGGERT, J. H., LEE, K. K. M., BENEDETTI, L. R., JEANLOZ, R., MASCRET, I., DAGUE, N., MARCHET, B., GLOAHEC, M. R. L., REVERDIN, C., PASLEY, J., WILLI, O., NEELY, D. & DANSON, C. (2004b). *Electronic conduction in shock-compressed water*. *Physics of Plasmas* **11**, no. 8, p. L41–L44.
- CELLIERS, P. M., LOUBEYRE, P., EGGERT, J. H., BRYGOO, S., MCWILLIAMS, R. S., HICKS, D. G., BOEHLY, T. R., JEANLOZ, R. & COLLINS, G. W. (2010). *Insulator-to-conducting transition in dense fluid helium*. *Phys. Rev. Lett.* **104**, p. 184503.
- CHERFILS-CLÉROUIN, C., BONIFACE, C., BONNEFILLE, M., DATTOLO, E., GALMICHE, D., GAUTHIER, P., GIORLA, J., LAFFITE, S., LIBERATORE, S., LOISEAU, P., MALINIE, G., MASSE, L., MASSON-LABORDE, P. E., MONTEIL, M. C.,

- POGGI, F., SEYTOR, P., WAGON, F. & WILLIEN, J. L. (2009). *Progress on lmj targets for ignition*. Plasma Physics and Controlled Fusion **51**, no. 12, p. 124018.
- CLARK, D. S., HAAN, S. W., HAMMEL, B. A., SALMONSON, J. D., CALLAHAN, D. A. & TOWN, R. P. J. (2010). *Plastic ablator ignition capsule design for the national ignition facility*. Physics of Plasmas **17**, no. 5, p. 052703.
- CLÉROUIN, J., LAUDERNET, Y., RECOULES, V. & MAZEVET, S. (2005). *Ab initio study of the optical properties of shocked lif*. Phys. Rev. B **72**, p. 155122.
- COLIN-LALU, P., RECOULES, V., SALIN, G. & HUSER, G. (2015). *Impact of oxygen on the 300-k isotherm of laser megajoule ablator using ab initio simulation*. Phys. Rev. E **92**, p. 053104.
- COLIN-LALU, P., RECOULES, V., SALIN, G., PLISSON, T., BRAMBRINK, E., VINCI, T., BOLIS, R. & HUSER, G. (2016). *Dissociation along the principal hugoniot of the laser mégajoule ablator material*. Phys. Rev. E **94**, p. 023204.
- COLLINS, L., BICKHAM, S., KRESS, J., MAZEVET, S., LENOSKY, T., TROULLIER, N. & LINDL, W. (2001). *Dynamical and optical properties of warm dense hydrogen*. Physical review B **63**.
- DANEL, J.-F. & KAZANDJIAN, L. (2015). *Equation of state of a dense plasma by orbital-free and quantum molecular dynamics : Examination of two isothermal-isobaric mixing rules*. Phys. Rev. E **91**, p. 013103.
- DESJARLAIS, M. P., KRESS, J. D. & COLLINS, L. A. (2002). *Electrical conductivity for warm, dense aluminum plasmas and liquids*. Phys. Rev. E **66**, p. 025401.
- DITTRICH, T. R., HAAN, S. W., MARINAK, M. M., POLLAINÉ, S. M. & MCEACHERN, R. (1998). *Reduced scale national ignition facility capsule design*. Physics of Plasmas **5**, no. 10, p. 3708–3713.
- DRUDE, P. (1900). *Zur elektronentheorie der metalle*. Annalen der Physik **306**, no. 3, p. 566–613.
- FOX, M. (2001). *Optical properties of solids*. Oxford University Press, New York.
- GILLES, D., LAMBERT, F., CLÉROUIN, J. & SALIN, G. (2007). *Yukawa monte carlo and orbital free molecular dynamics approaches for the equation of state and structural properties of hot dense matter*. High Energy Density Physics **3**, p. 95 – 98. Radiative Properties of Hot Dense Matter.
- GONCHAROV, V. N., BETTI, R., MCCRORY, R. L., SOROTOKIN, P. & VERDON, C. P. (1996). *Self-consistent stability analysis of ablation fronts with large froude numbers*. Physics of Plasmas **3**, no. 4, p. 1402–1414.

- GONZE, X., AMADON, B., ANGLADE, P.-M., BEUKEN, J.-M., BOTTIN, F., BOU-
LANGER, P., BRUNÉVAL, F., CALISTE, D., CARACAS, R., CÔTÉ, M., DEUTSCH,
T., GENOVESE, L., GHOSEZ, P., GIANTOMASSI, M., GOEDECKER, S., HAMANN,
D., HERMET, P., JOLLET, F., JOMARD, G., LEROUX, S., MANCINI, M., MAZE-
VET, S., OLIVEIRA, M., ONIDA, G., POUILLON, Y., RANGEL, T., RIGNANESE,
G.-M., SANGALLI, D., SHALTAF, R., TORRENT, M., VERSTRAETE, M., ZERAH,
G. & ZWANZIGER, J. (2009). *Abinit : First-principles approach to material and
nanosystem properties*. Computer Physics Communications **180**, no. 12, p. 2582 –
2615.
- GOTCHEV, O. V., GONCHAROV, V. N., KNAUER, J. P., BOEHLY, T. R., COLLINS,
T. J. B., EPSTEIN, R., JAANIMAGI, P. A. & MEYERHOFER, D. D. (2006). prl
96, p. 115005.
- GREENWOOD, D. A. (1958). *The boltzmann equation in the theory of electrical conduc-
tion in metals*. Proceedings of the Physical Society **71**, no. 4, p. 585.
- HAAN, S. W., HERRMANN, M. C., DITTRICH, T. R., FETTERMAN, A. J., MARI-
NAK, M. M., MUNRO, D. H., POLLAINÉ, S. M., SALMONSON, J. D., STROBEL,
G. L. & SUTER, L. J. (2005). *Increasing robustness of indirect drive capsule designs
against short wavelength hydrodynamic instabilities*. Physics of Plasmas **12**, no. 5,
p. 056316.
- HAMEL, S., BENEDICT, L. X., CELLIERS, P. M., BARRIOS, M. A., BOEHLY, T. R.,
COLLINS, G. W., DÖPPNER, T., EGGERT, J. H., FARLEY, D. R., HICKS, D. G.,
KLINE, J. L., LAZICKI, A., LEPAPE, S., MACKINNON, A. J., MOODY, J. D.,
ROBEY, H. F., SCHWEGLER, E. & STERNE, P. A. (2012). *Equation of state of
ch_{1.36} : First-principles molecular dynamics simulations and shock-and-release wave
speed measurements*. Phys. Rev. B **86**, p. 094113.
- HAMMEL, B. A., SCOTT, H. A., REGAN, S. P., CERJAN, C., CLARK, D. S., ED-
WARDS, M. J., EPSTEIN, R., GLENZER, S. H., HAAN, S. W., IZUMI, N., KOCH,
J. A., KYRALA, G. A., LANDEN, O. L., LANGER, S. H., PETERSON, K., SMA-
LYUK, V. A., SUTER, L. J. & WILSON, D. C. (2011). *Diagnosing and controlling
mix in national ignition facility implosion experiments*. Physics of Plasmas **18**, no. 5,
p. 056310.
- HICKS, D. G., BOEHLY, T. R., CELLIERS, P. M., EGGERT, J. H., MOON, S. J.,
MEYERHOFER, D. D. & COLLINS, G. W. (2009). *Laser-driven single shock com-
pression of fluid deuterium from 45 to 220 gpa*. Phys. Rev. B **79**, p. 014112.
- HICKS, D. G., BOEHLY, T. R., CELLIERS, P. M., EGGERT, J. H., VIANELLO, E.,
MEYERHOFER, D. D. & COLLINS, G. W. (2005). *Shock compression of quartz in
the high-pressure fluid regime*. Physics of Plasmas **12**, no. 8, p. 082702.

- HICKS, D. G., BOEHLY, T. R., EGGERT, J. H., MILLER, J. E., CELLIERS, P. M. & COLLINS, G. W. (2006). *Dissociation of liquid silica at high pressures and temperatures*. Phys. Rev. Lett. **97**, p. 025502.
- HICKS, D. G., CELLIERS, P. M., COLLINS, G. W., EGGERT, J. H. & MOON, S. J. (2003). *Shock-induced transformation of Al_2O_3 and LiF into semiconducting liquids*. Phys. Rev. Lett. **91**, p. 035502.
- HICKS, D. G., MEEZAN, N. B., DEWALD, E. L., MACKINNON, A. J., OLSON, R. E., CALLAHAN, D. A., DÖPPNER, T., BENEDETTI, L. R., BRADLEY, D. K., CELLIERS, P. M., CLARK, D. S., DI NICOLA, P., DIXIT, S. N., DZENITIS, E. G., EGGERT, J. E., FARLEY, D. R., FRENJE, J. A., GLENN, S. M., GLENZER, S. H., HAMZA, A. V., HEETER, R. F., HOLDER, J. P., IZUMI, N., KALANTAR, D. H., KHAN, S. F., KLINE, J. L., KROLL, J. J., KYRALA, G. A., MA, T., MACPHEE, A. G., MCNANEY, J. M., MOODY, J. D., MORAN, M. J., NATHAN, B. R., NIKROO, A., OPACHICH, Y. P., PETRASSO, R. D., PRASAD, R. R., RALPH, J. E., ROBESY, H. F., RINDERKNECHT, H. G., RYGG, J. R., SALMONSON, J. D., SCHNEIDER, M. B., SIMANOVSKAIA, N., SPEARS, B. K., TOMMASINI, R., WIDMANN, K., ZYLSTRA, A. B., COLLINS, G. W., LANDEN, O. L., KILKENNY, J. D., HSING, W. W., MACGOWAN, B. J., ATHERTON, L. J. & EDWARDS, M. J. (2012). *Implosion dynamics measurements at the national ignition facility*. Physics of Plasmas **19**, no. 12.
- HOHENBERG, P. & KOHN, W. (1964). *Inhomogeneous electron gas*. Phys. Rev. **136**, p. B864–B871.
- HOLZAPFEL, W. B. (1998). High Press. Res **16**, no. 81.
- HSING, W. W. & HOFFMAN, N. M. (1997). *Measurement of feedthrough and instability growth in radiation-driven cylindrical implosions*. Phys. Rev. Lett. **78**, no. 20, p. 3876–3879.
- HU, S. X., BOEHLY, T. R. & COLLINS, L. A. (2014a). *Properties of warm dense polystyrene plasmas along the principal Hugoniot*. Phys. Rev. E **89**, p. 063104.
- HU, S. X., COLLINS, L. A., GONCHAROV, V. N., BOEHLY, T., EPSTEIN, R., MCCRORY, R. L. & SKUPSKY, S. (2014b). *First-principles opacity of warm dense deuterium for inertial-confinement-fusion applications*. Phys. Rev. E **90**, p. 033111.
- HU, S. X., COLLINS, L. A., GONCHAROV, V. N., KRESS, J. D., MCCRORY, R. L. & SKUPSKY, S. (2015). *First-principles equation of state of polystyrene and its effect on inertial confinement fusion implosions*. Phys. Rev. E **92**, p. 043104.
- HUANG, H., HAAS, D. M., LEE, Y. T., WU, J. J., MORENO, K. A., STEPHENS, R. B., NIKROO, A., STADERMANN, M. & BHANDARKAR, S. D. (2013). *Oxygen profile determination in LiF gdp capsules using contact radiography*. Fusion Science and Technology **63**, p. 142.

- HURRICANE, O. A., CALLAHAN, D. A., CASEY, D. T., CELLIERS, P. M., CERJAN, C., DEWALD, E. L., DITTRICH, T. R., DOPPNER, T., HINKEL, D. E., HOPKINS, L. F., BERZAK KLINE, J. L., LE PAPE, S., MA, T., MACPHEE, A. G., MILOVICH, J. L., PAK, A., PARK, H.-S., PATEL, P. K., REMINGTON, B. A. AND SALMONSON, J. D., SPRINGER, P. T. & TOMMASINI, R. (2014). *Fuel gain exceeding unity in an inertially confined fusion implosion*. Nature **506**, p. 343.
- HUSER, G. & CASNER, A. (2010). *Rapport interne CEA*.
- HUSER, G., CASNER, A., MASSE, L., LIBERATORE, S., GALMICHE, D., JACQUET, L. & THEOBALD, M. (2011). *Reduced ablative rayleigh-taylor growth measurements in indirectly driven laminated foils*. Physics of Plasmas **18**, no. 1.
- HUSER, G., COURTOIS, C. & MONTEIL, M. C. (2009). *Wall and laser spot motion in cylindrical hohlraums*. Phys. Plasmas **16**, p. 032703.
- HUSER, G., OZAKI, N., SANO, T., SAKAWA, Y., MIYANISHI, K., SALIN, G., ASAUMI, Y., KITA, M., KONDO, Y., NAKATSUKA, K., URANISHI, H., YANG, T., YOKOYAMA, N., GALMICHE, D. & KODAMA, R. (2013). *Hugoniot and mean ionization of laser-shocked ge-doped plastic*. Physics of Plasmas **20**, p. 122703.
- HUSER, G., RECOULES, V., OZAKI, N., SANO, T., SAKAWA, Y., SALIN, G., ALBERTAZZI, B., MIYANISHI, K. & KODAMA, R. (2015). *Experimental and ab initio investigations of microscopic properties of laser-shocked ge-doped ablator*. Phys. Rev. E **92**, p. 063108.
- IOFFE, A. F. & REGEL, A. R. (1960). Prog. Semicond. **4**, p. 237.
- KILKENNY, J. D., GLENDINNING, S. G., HAAN, S. W., HAMMEL, B. A., LINDL, J. D., MUNRO, D., REMINGTON, B. A., WEBER, S. V., KNAUER, J. P. & VERDON, C. P. (1994). *A review of the ablative stabilization of the rayleigh-taylor instability in regimes relevant to inertial confinement fusion*. Physics of Plasmas **1**, no. 5, p. 1379–1389.
- KNUDSON, M. D. & DESJARLAIS, M. P. (2009). *Shock compression of quartz to 1.6 tpa : Redefining a pressure standard*. Phys. Rev. Lett. **103**, p. 225501.
- KNUDSON, M. D. & DESJARLAIS, M. P. (2013). *Adiabatic release measurements in α -quartz between 300 and 1200 gpa : Characterization of α -quartz as a shock standard in the multimegabar regime*. Phys. Rev. B **88**, p. 184107.
- KNUDSON, M. D. & DESJARLAIS, M. P. (2015). *Adiabatic release measurements in aluminum between 400 and 1200 gpa : Characterization of aluminum as a shock standard in the multimegabar regime*. Phys. Rev. B **91**, p. 224105.
- KNYAZEV, D. V. & LEVASHOV, P. R. (2015). *Ab initio calculation of thermodynamic, transport, and optical properties of ch2 plastics*. Physics of Plasmas **22**, p. 053303.

- KOENIG, M., PHILIPPE, F., BENUZZI-MOUNAIX, A., BATANI, D., TOMASINI, M., HENRY, E. & HALL, T. (2003). *Optical properties of highly compressed polystyrene using laser-driven shockwaves*. *Physics of Plasmas* **10**, no. 7, p. 3026–3029.
- KOHN, W. & SHAM, L. J. (1965). *Self-consistent equations including exchange and correlation effects*. *Phys. Rev.* **140**, p. A1133–A1138.
- KUBO, R. (1957). *Statistical-mechanical theory of irreversible processes. i. general theory and simple applications to magnetic and conduction problems*. *Journal of the Physical Society of Japan* **12**, no. 6, p. 570–586.
- KUNZ, A., LIU, H. & VAN GUNSTEREN, W. (2011). *Properties of warm dense polystyrene plasmas along the principal Hugoniot*. *J. Chem. Phys.* **135**, p. 104106.
- LAMBERT, F. & RECOULES, V. (2012). *Plastic ablator and hydrodynamic instabilities : A first-principles set of microscopic coefficients*. *Phys. Rev. E* **86**, p. 026405.
- LANDEN, O. L., EDWARDS, J., HAAN, S. W., ROBEY, H. F., MILOVICH, J., SPEARS, B. K., WEBER, S. V., CLARK, D. S., LINDL, J. D., MACGOWAN, B. J., MOSES, E. I., ATHERTON, J., AMENDT, P. A., BOEHLY, T. R., BRADLEY, D. K., BRAUN, D. G., CALLAHAN, D. A., CELLIERS, P. M., COLLINS, G. W., DEWALD, E. L., DIVOL, L., FRENJE, J. A., GLENZER, S. H., HAMZA, A., HAMMEL, B. A., HICKS, D. G., HOFFMAN, N., IZUMI, N., JONES, O. S., KILKENNY, J. D., KIRKWOOD, R. K., KLINE, J. L., KYRALA, G. A., MARINAK, M. M., MEEZAN, N., MEYERHOFER, D. D., MICHEL, P., MUNRO, D. H., OLSON, R. E., NIKROO, A., REGAN, S. P., SUTER, L. J., THOMAS, C. A. & WILSON, D. C. (2011). *Capsule implosion optimization during the indirect-drive national ignition campaign*. *Physics of Plasmas* **18**, no. 5, p. 051002.
- LAUDERNET, Y., CLÉROUIN, J. & MAZEVET, S. (2004). *Ab initio simulations of the electrical and optical properties of shock-compressed SiO_2* . *Phys. Rev. B* **70**, p. 165108.
- LIBERMAN, D. A. (1982). *Inferno : A better model of atoms in dense plasmas*. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* **27**, no. 3, p. 335 – 339.
- LINDL, J. D., AMENDT, P., BERGER, R. L., GLENDINNING, S. G., GLENZER, S. H., HAAN, S. W., KAUFFMAN, R. L., LANDEN, O. L. & SUTER, L. J. (2004). *The physics basis for ignition using indirect-drive targets on the national ignition facility*. *Physics of Plasmas* **11**, no. 2, p. 339–491.
- MARINAK, M. M., TIPTON, R. E., LANDEN, O. L., MURPHY, T. J., AMENDT, P., HAAN, S. W., HATCHETT, S. P., KEANE, C. J., MCEACHERN, R. & WALLACE, R. (1996). *Three-dimensional simulations of nova high growth factor capsule implosion experiments*. *Physics of Plasmas* **3**, no. 5, p. 2070–2076.

- MASSE, L. (2007). *Stabilizing effect of anisotropic thermal diffusion on the ablative rayleigh-taylor instability*. Physical Review Letters **98**, no. 24, p. 245001.
- MATTSSON, T. R., LANE, J. M. D., COCHRANE, K. R., DESJARLAIS, M. P., THOMPSON, A. P., PIERCE, F. & GREY, G. S. (2010). *First-principles and classical molecular dynamics simulation of shocked polymers*. Phys. Rev. B **81**, p. 054103.
- MAZEVET, S., KRESS, J. D., COLLINS, L. A. & BLOTTIAU, P. (2003). *Quantum molecular-dynamics study of the electrical and optical properties of shocked liquid nitrogen*. Phys. Rev. B **67**, p. 054201.
- MERMIN, N. D. (1965). *Thermal properties of the inhomogeneous electron gas*. Phys. Rev. **137**, p. A1441–A1443.
- MICHELSENS, S., VAN ERP, T. S., KUTZNER, C., CEULEMANS, A. & DE GROOT, B. L. (2012). *Molecular dynamics in principal component space*. The Journal of Physical Chemistry B **116**, no. 29, p. 8350–8354.
- MILLER, G. H., MOSES, E. I. & WUEST, C. R. (2004). *The national ignition facility : enabling fusion ignition for the 21st century*. Nuclear Fusion **44**, no. 12, p. S228.
- MILLER, J. E., BOEHLY, T. R., MELCHIOR, A., MEYERHOFER, D. D., CELLIERS, P. M., EGGERT, J. H., HICKS, D. G., SORCE, C. M., OERTEL, J. A. & EMMEL, P. M. (2007). *Streaked optical pyrometer system for laser-driven shock-wave experiments on omega*. Review of Scientific Instruments **78**, no. 3, p. 034903.
- MONKHORST, H. J. & PACK, J. D. (1976). *Special points for brillouin-zone integrations*. Phys. Rev. B **13**, p. 5188–5192.
- MORE, R. (1985). *Pressure ionization, resonances, and the continuity of bound and free states*. tome 21 de *Advances in Atomic and Molecular Physics*, p. 305 – 356. Academic Press.
- MORE, R. M., WARREN, K. H., YOUNG, D. A. & ZIMMERMAN, G. B. (1988). *A new quotidian equation of state (qeos) for hot dense matter*. Physics of Fluids **31**, no. 10, p. 3059–3078.
- MUNRO, D. H., CELLIERS, P. M., COLLINS, G. W., GOLD, D. M., DA SILVA, L. B., HAAN, S. W., CAUBLE, R. C., HAMMEL, B. A. & HSING, W. W. (2001). *Shock timing technique for the national ignition facility*. Physics of Plasmas **8**, no. 5, p. 2245–2250.
- NELLIS, W. J., WEIR, S. T. & MITCHELL, A. C. (1999). *Minimum metallic conductivity of fluid hydrogen at 140 gpa (1.4 mbar)*. Phys. Rev. B **59**, p. 3434–3449.
- NIF (2012). *Science of fusion ignition on nif workshop*. Rapport technique LLNL-TR-570412, LLNL.

- OHKI, Y., FUSE, N. & ARAI, T. (2010). *Band gap energies and localized states in several insulating polymers estimated by optical measurements*. Annual Report - Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, CEIDP .
- OZAKI, N., SANO, T., IKOMA, M., SHIGEMORI, K., KIMURA, T., MIYANISHI, K., VINCI, T., REE, F. H., AZECHI, H., ENDO, T., HIRONAKA, Y., HORI, Y., IWAMOTO, A., KADONO, T., NAGATOMO, H., NAKAI, M., NORIMATSU, T., OKUCHI, T., OTANI, K., SAKAIYA, T., SHIMIZU, K., SHIROSHITA, A., SUNAHARA, A., TAKAHASHI, H. & KODAMA, R. (2009). *Shock hugoniot and temperature data for polystyrene obtained with quartz standard*. Physics of Plasmas **16**, no. 6, p. 062702.
- PAYNE, M. C., TETER, M. P., ALLAN, D. C., ARIAS, T. A. & JOANNOPOULOS, J. D. (1992). *Iterative minimization techniques for ab initio total-energy calculations : molecular dynamics and conjugate gradients*. Rev. Mod. Phys. **64**, p. 1045–1097.
- PIRIZ, A. R., SANZ, J. & IBANEZ, L. F. (1997). *Rayleigh–taylor instability of steady ablation fronts : The discontinuity model revisited*. Physics of Plasmas **4**, no. 4, p. 1117–1126.
- PIRON, R. & BLENSKI, T. (2011). *Variational-average-atom-in-quantum-plasmas (vaaqp) code and virial theorem : Equation-of-state and shock-hugoniot calculations for warm dense al, fe, cu, and pb*. Phys. Rev. E **83**, p. 026403.
- PLISSON, T., COLIN-LALU, P., HUSER, G. & LOUBEYRE, P. (2016). *Measurement of the equation of state and of the index of refraction of an amorphous glow discharge polymer up to 45 gpa*. Journal of Applied Physics **120**, no. 8, p. 085903.
- REGAN, S. P., DELETTREZ, J. A., GONCHAROV, V. N., MARSHALL, F. J., SOURES, J. M., SMALYUK, V. A., RADHA, P. B., YAAKOBI, B., EPSTEIN, R., GLEBOV, V. Y., JAANIMAGI, P. A., MEYERHOFER, D. D., SANGSTER, T. C., SEKA, W., SKUPSKY, S., STOECKL, C., HAYNES, D. A., FRENJE, J. A., LI, C. K., PETRASSO, R. D. & SÉGUIN, F. H. (2004). *Dependence of shell mix on feedthrough in direct drive inertial confinement fusion*. Phys. Rev. Lett. **92**, no. 18, p. 185002.
- RENAUDIN, P., BLANCARD, C., CLÉROUIN, J., FAUSSURIER, G., NOIRET, P. & RECOULES, V. (2003). *Aluminum equation-of-state data in the warm dense matter regime*. Phys. Rev. Lett. **91**, p. 075002.
- RENAUDIN, P., BLANCARD, C., FAUSSURIER, G. & NOIRET, P. (2002). *Combined pressure and electrical-resistivity measurements of warm dense aluminum and titanium plasmas*. Phys. Rev. Lett. **88**, p. 215001.
- ROBEY, H. F., BOEHLY, T. R., CELLIERS, P. M., EGGERT, J. H., HICKS, D., SMITH, R. F., COLLINS, R., BOWERS, M. W., KRAUTER, K. G., DATTE, P. S., MUNRO, D. H., MILOVICH, J. L., JONES, O. S., MICHEL, P. A., THOMAS,

- C. A., OLSON, R. E., POLLAINÉ, S., TOWN, R. P. J., HAAN, S., CALLAHAN, D., CLARK, D., EDWARDS, J., KLINE, J. L., DIXIT, S., SCHNEIDER, M. B., DEWALD, E. L., WIDMANN, K., MOODY, J. D., DOPPNER, T., RADOUSKY, H. B., THROOP, A., KALANTAR, D., DINICOLA, P., NIKROO, A., KROLL, J. J., HAMZA, A. V., HORNER, J. B., BHANDARKAR, S. D., DZENITIS, E., ALGER, E., GIRALDEZ, E., CASTRO, C., MORENO, K., HAYNAM, C., LAFORTUNE, K. N., WIDMAYER, C., SHAW, M., JANCAITIS, K., PARHAM, T., HOLUNGA, D. M., WALTERS, C. F., HAID, B., MAPOLES, E. R., SATER, J., GIBSON, C. R., MALSBURY, T., FAIR, J., TRUMMER, D., COFFEE, K. R., BURR, B., BERZINS, L. V., CHOATE, C., BRERETON, S. J., AZEVEDO, S., CHANDRASEKARAN, H., EDER, D. C., MASTERS, N. D., FISHER, A. C., STERNE, P. A., YOUNG, B. K., LANDEN, O. L., WONTERGHEM, B. M. V., MACGOWAN, B. J., ATHERTON, J., LINDL, J. D., MEYERHOFER, D. D. & MOSES, E. (2012). *Shock timing experiments on the national ignition facility: Initial results and comparison with simulation*. *Physics of Plasmas* **19**, no. 4, p. 042706.
- ROUSSEAU, C., HUSER, G., LOISEAU, P., CASANOVA, M., ALOZY, E., VILLETTE, B., WROBEL, R., HENRY, O. & RAFFESTIN, D. (2015). *Laser parametric instability experiments of a 3ω , 15kj, 6-ns laser pulse in gas-filled hohlraums at the ligne d'intégration laser facility*. *Physics of Plasmas* **22**, no. 2, p. 022706,.
- SANZ, J. (1994). *Self-consistent analytical model of the rayleigh-taylor instability in inertial confinement fusion*. *Phys. Rev. Lett.* **73**, no. 20, p. 2700–2703.
- SESAME (1992). *The LANL Equation of State Database*. Rapport technique LA-UR-92-3407, LANL.
- SHIGEMORI, K., AZECHI, H., NAKAI, M., ENDO, T., NAGAYA, T. & YAMANAKA, T. (2002). *Perturbation transfer from the front to rear surface of laser-irradiated targets*. *Phys. Rev. E* **65**, no. 4, p. 045401.
- SMALYUK, V. A., DELETTREZ, J. A., DUMANIS, S. B., GLEBOV, V. Y., GONCHAROV, V. N., KNAUER, J. P., MARSHALL, F. J., MEYERHOFER, D. D., RADHA, P. B., REGAN, S. P., ROBERTS, S., SANGSTER, T. C., SKUPSKY, S., SOURES, J. M., STOECKL, C., TOWN, R. P. J., YAAKOBI, B., FRENJE, J. A., LI, C. K., PETRASSO, R. D., SEGUIN, F. H., MCCROREY, D. L., MANCINI, R. C. & KOCH, J. A. (2003). *Hydrodynamic growth of shell modulations in the deceleration phase of spherical direct-drive implosions*. *Physics of Plasmas* **10**, no. 5, p. 1861–1866.
- SMALYUK, V. A., DELETTREZ, J. A., GONCHAROV, V. N., MARSHALL, F. J., MEYERHOFER, D. D., REGAN, S. P., SANGSTER, T. C., TOWN, R. P. J. & YAAKOBI, B. (2002). *Rayleigh–Taylor instability in the deceleration phase of spherical implosion experiments*. *Physics of Plasmas* **9**, no. 6, p. 2738–2744.
- SORCE, C., SCHEIN, J., WEBER, F., WIDMANN, K., CAMPBELL, K., DEWALD, E., TURNER, R., LANDEN, O., JACOBY, K., TORRES, P. & PELLINEN, D. (2006).

- Soft x-ray power diagnostic improvements at the omega laser facility.* tome 77, p. 10E518. AIP.
- TAKABE, H., MIMA, K., MONTIERTH, L. & MORSE, R. L. (1985). *Self-consistent growth rate of the rayleigh–taylor instability in an ablatively accelerating plasma.* Physics of Fluids **28**, no. 12, p. 3676–3682.
- WANG, C., HE, X.-T. & ZHANG, P. (2011). *Thermophysical properties for shock compressed polystyrene.* Physics of Plasmas **18**, p. 082707.
- WILSON, D. C., CRANFILL, C. W., CHRISTENSEN, C., FORSTER, R. A., PETERSON, R. R., HOFFMAN, N. M., POLLAK, G. D., LI, C. K., SEGUIN, F. H., FRENJE, J. A., PETRASSO, R. D., MCKENTY, P. W., MARSHALL, F. J., GLEBOV, V. Y., STOECKL, C., SCHMID, G. J., IZUMI, N. & AMENDT, P. (2004). *Multifluid interpenetration mixing in directly driven inertial confinement fusion capsule implosions.* tome 11, p. 2723–2728. AIP.
- YOUNG, D. A. & COREY, E. M. (1995). *A new global equation of state model for hot, dense matter.* Journal of Applied Physics **78**, no. 6, p. 3748–3755.
- ZEL'DOVICH, Y. B. & RAIZER, Y. P. (1967). *Physics of shock waves and high temperature hydrodynamic phenomena.* Academic, New York.