

Ecole doctorale : SMRE
Laboratoire : LASIR
Discipline : Optique et Lasers,
Physico-Chimie, Atmosphère

NOM/PRENOM DU CANDIDAT : SUKHOMLINOV/Sergey

N° d'ordre : 41026

JURY :

Directeur de Thèse : SMIRNOV Konstantin

Rapporteurs : KALINICHEV Andrey , MÜSER Martin

Membres : CRISTOL Sylvain , SALANNE Mathieu and ISPAS Simona

TITRE DE LA THESE :

Développement de modèle de potentiels effectifs d'interactions interatomiques pour la modélisation d'oxydes

RESUME :

Le modèle de potentiels effectifs d'interactions interatomiques (champ de forces) pour la modélisation d'oxydes a été développé avec l'utilisation de calculs *ab initio* basés sur la théorie de la fonctionnelle de la densité. Le champ de forces décrit l'énergie potentielle totale du système par la somme de l'énergie électrostatique, celle de dispersion, et l'énergie d'interactions à courte portée.

L'énergie électrostatique a été décrite par le modèle d'équilibration des transferts de charge (SQE) basé sur l'approche d'égalisation du potentiel chimique (CPE). Le calcul de coefficients de dispersion, qui déterminent les interactions de dispersion, a été réalisé avec l'utilisation de fonctions Wannier maximalelement localisées (MLWF). La position des centres des MLWF près d'atomes dans les oxydes permet de calculer les coefficients de dispersion pour chaque atome. Les calculs des coefficients de dispersion ont montré, que leur valeur dépend du nombre d'atomes et du rayon de la première sphère de coordination. Le développement de potentiels d'interaction à courte portée a été réalisé avec l'utilisation de la méthode "force-matching", ce qui a permis de choisir la forme analytique des potentiels. Les paramètres des composants du champ de force ont été obtenus sur la base de calculs de chimie quantique de systèmes isolés et périodiques quantique de structures de silicates. Les paramètres du modèle SQE on été calibrés en utilisant le potentiel électrostatique la quantité de référence.

Le champ de forces complet a été testé dans les simulations de polymorphes cristallines de la silice par la méthode de la dynamique moléculaire. Les résultats des calculs ont permit de choisir le meilleur modèle. Le champ de forces sélectionné reproduit bien les caractéristiques structurales de α -quartz et α -cristobalite. Le calcul de spectres vibrationnels des systèmes montre que le champ de forces sous-estime les constantes de force Si-O, que conduit à un déplacement de spectres vibrationnels vers les basses fréquences par rapport des spectres expérimentaux. Les voies visant l'amélioration de la performance du champ de forces sont proposées.

Soutenance le 18/12/2012 à 10h30 Heures
Lieu Amphithéâtre du CERLA