

Collisions moléculaires dans le MIS : excitation rovibrationnelle et réactivité

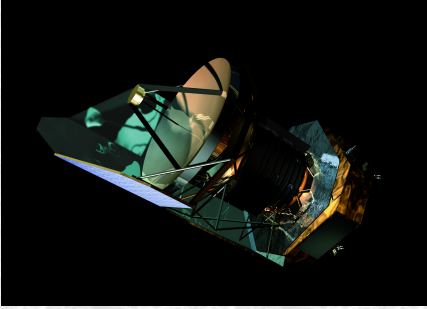
Christian Balança, Fabrice Dayou,
Nicole Feautrier, François Lique,
Nicolas Moreau, Annie Spielfiedel,
Lucie Vincent

LERMA - Meudon

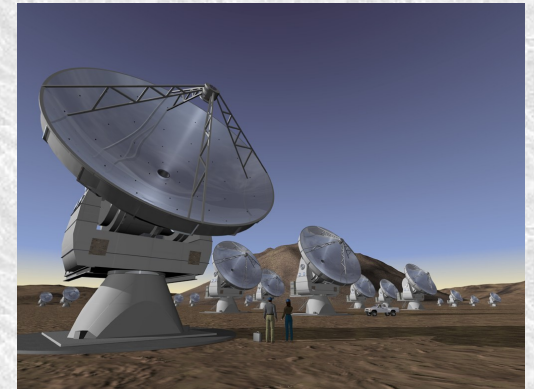
Abstract

- Le calcul de **taux de collision** de molécules (CO, CS, SiS, SiO, SO₂, C₂H₂) avec He ou H₂ passe par l'obtention d'une surface de potentiel permettant ensuite un calcul de dynamique menant aux sections efficaces puis aux taux.
- Ces calculs de chimie quantique sont relativement lourds et nécessitent des moyens de calculs importants. Ils utilisent des codes propriétaires **MOLPRO** et libres **MOLSCAT**
- Les résultats rovibrationnels ont vocation à être utilisés dans des codes de transfert de rayonnement pour interpréter les spectres de Herschel et Alma. Ils sont accessibles dans **OV** par la base de donnée Basecol.
- Développement d'outils de **collisions réactives** (en phase gazeuse, interaction gaz-grain, ...)
- Collaborations nationales et internationales.

Excitation rovibrationnelle des molécules



- Taux de collisions
- Réseau Molecular Universe
- OV
- Bases de données
- Codes de transfert de rayonnement
- Interprétation des spectres de [Herschel](#) et [Alma](#)



Processus réactifs

- **Réactivité** en phase gazeuse
 - ♦ Réactions chimiques ($\text{Si} + \text{O}_2 \rightarrow \text{SiO} + \text{O}$, ...)
 - ♦ Association radiative
 - ♦ Photodissociation
 - ♦ Recombinaison dissociative
- **Interactions** gaz-grains
 - ♦ $\text{CO} \rightarrow \text{HCO} \rightarrow \text{H}_2\text{CO} \rightarrow \text{H}_3\text{CO} \rightarrow \text{CH}_3\text{OH}$

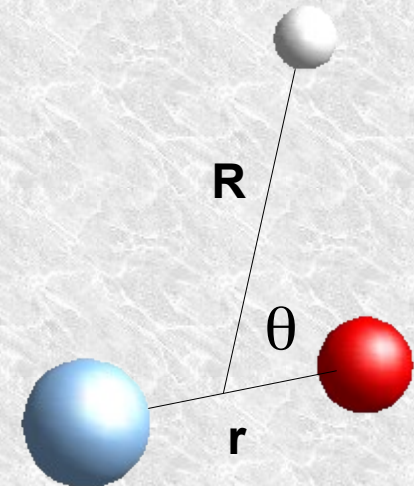
Surface de potentiel

- Méthodes **monoconfigurationnelles**
 - ♦ **CCSD(T) Coupled Cluster**
Coupled-Cluster with Single and Double and Perturbative Triple excitations
collisions inélastiques dans l'état électronique fondamental

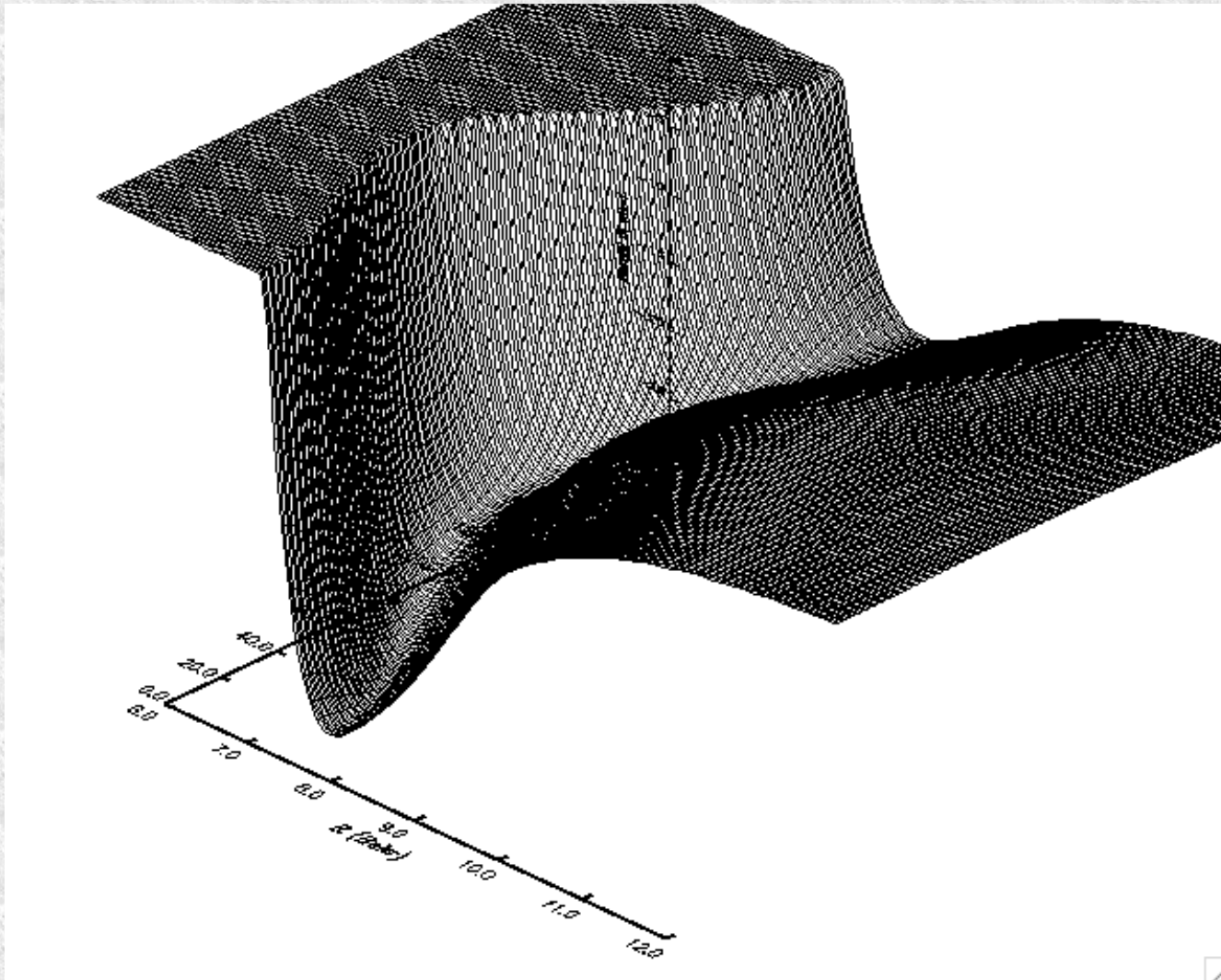
- Méthodes **multiconfigurationnelles**
 - ♦ **CASSCF+MRCI**
Complete Active Space Self-Consistent Field + Multi-Reference Configuration Interaction
collisions inélastiques avec couplages entre états électroniques ou réactivité

Molpro

- Calcul **parallèle** (4 procs)
 - 15 min / géométrie x 5 000 (SiO + He) = **1 200 h**
 - 30 min / géométrie x 25 000 (SO₂ + H₂) = **12 000 h**
 - 3 h / géométrie x 5 000 (Si + O₂) = **15 000 h**
 - **2-3 Go RAM et 10 Go disque**
- Logiciel **propriétaire**
- **Stockage** des fonctions d'onde (50 Go)



Surface SiO + He



Sections efficaces

- $\text{SiO} (v,j) + \text{He} \rightarrow \text{SiO} (v',j') + \text{He}$
 - $\sigma_{vj \rightarrow v'j'} (E)$
 - Taux (T)
- Méthodes
 - Close Coupling (exacte, N^3)
 - Coupled States
 - Infinite Order Sudden

Molscat

- Calcul **scalaire**
 - ♦ De 1h à 4 jours selon méthode et E_c considérée
 - ♦ Gamme complète d'énergie ($E_c = 1 - 5000 \text{ cm}^{-1}$ soit Taux pour $T = 5 - 300 \text{ K}$ en **10 000 h**)
 - ♦ **2 Go**
- Logiciel **libre**
- **Stockage** des matrices S de collision (100Go)

Réactivité

- Quasi Classical Trajectory (QCT)
 - ♦ Séparable (/ trajectoire $\sim 10^5$) / condition initiale (NRG, niveau rovibrationnel initial)
- Quantique dépendant du temps, paquet d'ondes ($\sim N^2$)
 - ♦ Séparable par niveau rovibrationnel initial
- Quantique indépendant du temps, close coupling ($\sim N^3$)
 - ♦ Séparable en JTOT et NRG

Collaborations

- Marne La Vallée (P. Rosmus, G. Chambaud)
- Grenoble (A. Faure, P. Valiron)
- Madrid (J. Cernicharo, M.L. Senent)

- **GRAMIS** (Groupe de Réflexion sur l'Astrochimie du MIS)
- Lille (M. Monnerville)
- Bordeaux (J.C. Rayez)
- Rennes (J.M. Launay)
- Madrid (G. Delgado-Barrio)

Bilan des besoins

- Calculs lourds en temps --> grille
- Parallèle ou non
- Propriétaire ou libre
- 3 Go par processeur
- 10 To stockage --> Lerma