

Mathematisch-Naturwissenschaftliche Fakultät

Institut für Biowissenschaften / Chemie / Mathematik / Physik

Fachgebiet: *siehe Webseite bzw. Promotionsordnung*

Betreuer: Prof. Dr. Ronald Redmer

Ihr Name: Argha Jyoti Roy

E-mail: argha.roy@uni-rostock.de

Mixtures of Methane and Hydrogen under Planetary Conditions

Englische Zusammenfassung

The present cumulative thesis describes the thermodynamic and electronic properties of mixtures of methane (CH_4) and hydrogen (H_2) at high pressures and temperatures. Hydrogen, Methane and Water are the most abundant molecules in our Universe and yet attributes of their mixtures lack substantial data and understanding. We focus on characterizing and calculating equation of state and structural changes of $\text{CH}_4\text{-H}_2$ mixtures using *ab initio* method density functional theory molecular dynamics (DFT-MD).

To complement the existing sparse dataset on the mixture of methane and hydrogen, we first investigate thermodynamic properties of the fluid mixture. We then compare the resulting equation of state and structural changes to those of pure methane and hydrogen to understand the mixture as a whole. Expanding on this, we explain the changes in thermodynamic and electronic properties due to varying concentrations of hydrogen molecules in the mixture. Additionally, we discuss models that incorporate nonideal effects as a function of concentration for the thermal equation of state and electronic properties. We also validate the linear mixing approximation for the binary mixture of methane and hydrogen. Finally, we outline the basics and computational efficacy of a new technique, stochastic finite-temperature density functional theory combined with Langevin dynamics (sDFT-MD), to overcome the computational challenges of traditional DFT-MD under warm dense matter conditions.

Deutsche Zusammenfassung

Die vorliegende kumulative Dissertation beschreibt die thermodynamischen und elektronischen Eigenschaften von Mischungen aus Methan (CH_4) und Wasserstoff (H_2) bei hohen Drücken und Temperaturen. Wasserstoff, Methan und Wasser gehören zu den häufigsten Molekülen im Universum, und dennoch mangelt es bislang an ausreichenden Daten und Verständnis über die Eigenschaften ihrer Mischungen. Im Fokus dieser Arbeit steht die Charakterisierung und Berechnung der Zustandsgleichung sowie der strukturellen Veränderungen von $\text{CH}_4\text{-H}_2$ Mischungen mithilfe der *ab initio*-Methode der Molekulardynamik auf Grundlage der Dichtefunktionaltheorie (DFT-MD).

Um die bislang spärliche Datengrundlage zu Mischungen aus Methan und Wasserstoff zu erweitern, untersuchen wir zunächst die thermodynamischen Eigenschaften der Fluidmischung. Anschließend vergleichen wir die daraus resultierende Zustandsgleichung und die strukturellen Veränderungen mit denen von reinem Methan und reinem Wasserstoff, um ein umfassenderes Verständnis der Mischung zu erlangen. Darauf aufbauend erläutern wir die Änderungen der thermodynamischen und elektronischen Eigenschaften in Abhängigkeit von unterschiedlichen Wasserstoffkonzentrationen in der Mischung. Zusätzlich werden Modelle vorgestellt, die nichtideale Effekte als Funktion der Konzentration für die thermische Zustandsgleichung und die elektronischen Eigenschaften berücksichtigen. Weiterhin überprüfen wir die Gültigkeit der linearen Mischungsnäherung für das binäre System aus Methan und Wasserstoff. Abschließend stellen wir die Grundlagen und die rechnerische Effizienz einer neuen Methode vor – der stochastischen Dichtefunktionaltheorie bei endlicher Temperatur kombiniert mit Langevin-Dynamik (sDFT-MD) um die rechnerischen Herausforderungen der herkömmlichen DFT-MD unter Bedingungen dichter, warmer Materie zu überwinden.