

КВАЗИИЗЭНТРОПИЧЕСКОЕ СЖАТИЕ ЖИДКОГО АРГОНА ДО 500 ГПа

В. Д. Урлин, М. А. Мочалов, О. Л. Михайлова

*Российский федеральный ядерный центр
«Всероссийский научно-исследовательский институт экспериментальной физики»
607190, Саров, Россия*

Поступила в редакцию 8 июля 1996 г.

Экспериментально исследована сжимаемость жидкого аргона до давлений ~ 500 ГПа. Вещество сжималось цилиндрической оболочкой, разгоняемой продуктами взрыва взрывчатых веществ. Плотность регистрировалась гаммаграфическим методом, давление определялось из газодинамических расчетов. Сравнение экспериментальных и расчетных результатов показало достаточно хорошую изэнтропичность рассмотренного процесса сжатия. Сжатие жидкого аргона до плотности 7.3 г/см^3 не показало явных аномалий, связанных со структурным переходом или металлизацией.

1. ВВЕДЕНИЕ

Изучение сжимаемости аргона при очень высоких давлениях (выше 100 ГПа) представляет интерес с точки зрения обнаружения фазовых переходов, а также из-за полного отсутствия экспериментальных данных в этой области. В статических условиях при $T = 298 \text{ К}$ изученная область в Ar доведена до ~ 80 ГПа [1]. Ударная адиабата жидкого аргона исследована до ~ 90 ГПа [2, 3].

Квазиизэнтропический процесс сжатия происходит более медленно и плавно по сравнению с ударным. Трансформация ударно-волнового сжатия в изэнтропическое в экспериментальной конструкции существенно уменьшает тепловой нагрев вещества, что приводит к увеличению его сжатия. Кроме того, в этих условиях исследуемое вещество большее время удерживается при высоком давлении. Это значительно расширяет возможности исследования состояний, при которых предполагаются фазовые переходы.

В работе [4] при квазиизэнтропическом сжатии жидкого Ar давлением 60 ГПа до плотности 3.9 г/см^3 не обнаружено аномалий, связанных с фазовым переходом. В ксеноне [5] при его исследовании тем же способом до плотности 13 г/см^3 получены данные, свидетельствующие о фазовом переходе, который, согласно результатам работ [6, 7], можно связать с перестройкой гранцентрированной кубической (ГЦК) решетки в гексагональную плотноупакованную (ГПУ) структуру. С учетом экспериментальных данных по изотермическому сжатию [8, 9] плотность, при которой происходит этот переход, оценивается значением 8.37 г/см^3 .

При атмосферном давлении твердый аргон имеет ГЦК структуру. Согласно расчетам МакМахана [10], при давлении ~ 230 ГПа возможны переход исходной структуры твердого аргона в ГПУ структуру и ее металлизация при ~ 430 ГПа. Металлизация исходной ГЦК решетки Ar возможна по тем же расчетам при ~ 550 ГПа.

В настоящей работе получены новые данные по измерению квазиизэнтропической сжимаемости жидкого аргона в области давлений от 90 до 500 ГПа и плотностей от 4 до

8 г/см³. В этой области не обнаружено явных аномалий, связанных со структурными переходами, предсказанными в работе [10].

2. МЕТОДИКА ИЗМЕРЕНИЙ

Схема экспериментального устройства аналогична описанной в [4]. Под действием высокого давления продуктов взрыва мощного взрывчатого вещества, окружающего экспериментальное устройство, цилиндрическая оболочка из меди или вольфрамового сплава движется к оси, формируя в первый момент в находящемся внутри исследуемом веществе (аргоне) относительно слабую сходящуюся ударную волну. Квазиизэнтропическое сжатие в последующие моменты времени реализуется циркулирующей ударных волн и плавного сжатия аргона сходящейся к оси оболочкой. Движение оболочки тормозится возрастающим давлением в исследуемом веществе. В некоторый момент она останавливается и затем движется в обратном направлении. Максимальное сжатие осуществляется в момент остановки оболочки.

Траектория движения оболочки, по которой оценивался размер полости с жидким Ag в момент остановки, фиксировалась в серии последовательных экспериментов с помощью мощной гаммаграфической установки с малым временем экспозиции [11]. Анализ газодинамических расчетов показал, что за время обжатия газа даже при самом высоком давлении в исследованном диапазоне не происходит разгрузки исследованного объема. В этом случае средняя плотность сжатого аргона оценивалась из выражения

$$\rho = \rho_0 \left(\frac{R_0}{R_{min}} \right)^2.$$

Здесь $\rho_0 = 1.4$ г/см³ — начальная плотность Ag при $T = 87$ К, R_0 и R_{min} — радиусы оболочки соответственно в исходном состоянии и в момент рентгенографирования при остановке оболочки. Точность оценки плотности определяется точностью измерения радиуса оболочки на экспериментальной рентгенограмме. Измерение тем надежнее, чем выше качество рентгенограммы и степень контраста границы оболочки с жидким аргоном. С этой целью, а также для получения высоких степеней сжатия в экспериментах использовались оболочки из меди при плотностях аргона $\lesssim 5$ г/см³ и вольфрамового сплава при плотностях > 5 г/см³.

Качество рентгенограммы определяется различными факторами, один из которых — нерезкость изображения. Нерезкость зависит от геометрического размера фокуса источника излучения, связана с движением оболочки за время рентгенографирования и с влиянием усиливающих экранов, превращающих рентгеновское излучение в видимое. При действии всех типов искажающих факторов суммарная нерезкость будет минимальна в момент максимального сжатия газа, когда оболочка останавливается и динамическая нерезкость исчезает. Влияние искажающих факторов может проявиться не только в ухудшении качества изображения, но и в смещении границы регистрируемой на пленке полости оболочки по сравнению с ее истинным положением.

Оценка суммарного влияния искажающих факторов проводилась в специальных опытах, в которых регистрировались изображения оболочек, имитирующих реальные экспериментальные конструкции в сжатом состоянии. Отличие основного эксперимента от модельного состоит в более сложном распределении массы вещества по сечению

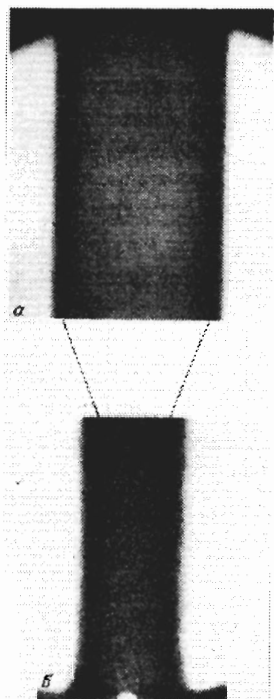


Рис. 1

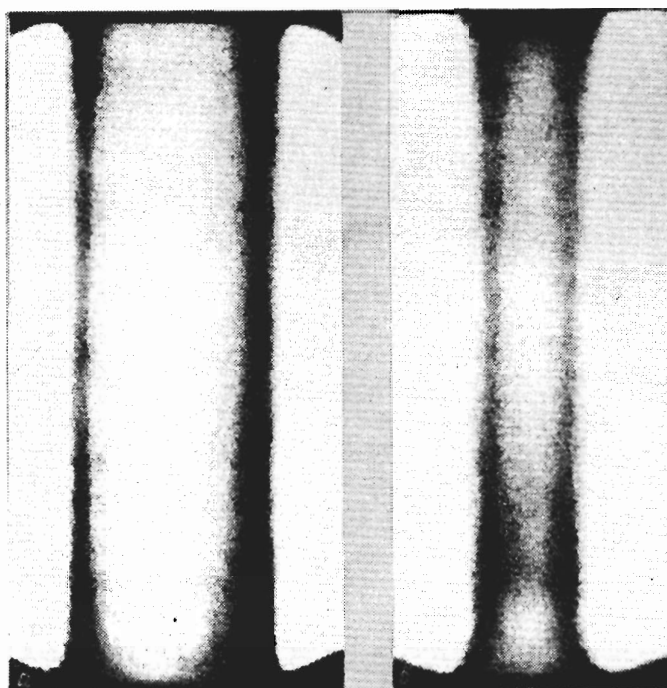


Рис. 2

Рис. 1. Теневое рентгеновское изображение вольфрамовой оболочки при плотности сжатого аргона $\sim 6 \text{ г/см}^3$: *a* — оболочка в исходном состоянии; *b* — в момент максимального сжатия

Рис. 2. То же, что на рис. 1, но при максимально достигнутой плотности аргона $\sim 7.3 \text{ г/см}^3$: *a* — оболочка в исходном состоянии; *b* — оболочка в сжатом состоянии

сжатой полости. Анализ полученных результатов позволяет утверждать, что смещения видимых границ регистрируемых оболочек относительно их истинных размеров не происходит. Оценки размеров модельных изображений показали, что методическая точность измерения для диаметров $\geq 8 \text{ мм}$ составляет $\pm 4\%$. Эта величина и принята за точность в настоящих экспериментах.

На рис. 1 приведена фотография теневого изображения из вольфрамового сплава в эксперименте при плотности сжатого аргона $\sim 6 \text{ г/см}^3$, а на рис. 2 такая же фотография, но при максимально достигнутой плотности $\sim 7.3 \text{ г/см}^3$. Из рисунков видно, что процесс сжатия в применяемых конструкциях характеризуется хорошей симметрией при удовлетворительном контрасте внутренней границы оболочки с жидким аргоном. Прямолинейность и симметричность границы сохраняется по всей длине сжимаемой части цилиндра ($\sim 10 \text{ см}$) и при самых высоких степенях сжатия, достигнутых в настоящей работе. Качественно это также указывает на отсутствие разгрузки, идущей с торцов цилиндра.

Экспериментальные значения для траектории внутренней полости вольфрамовой оболочки приведены на рис. 3. Там же показана рассчитанная траектория с учетом уравнений состояния всех материалов, имеющих в конструкции. Результаты измерений

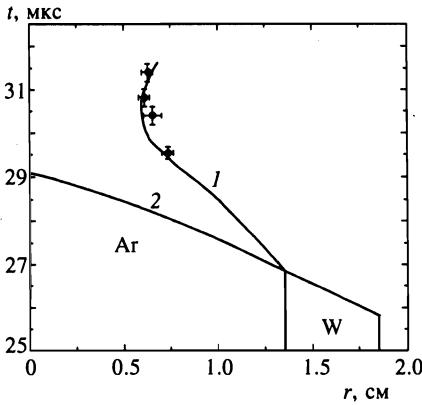


Рис. 3. Траектория движения вольфрамовой оболочки с аргоном: точки — эксперимент; 1 — расчет, 2 — адиабата Гюгонио

плотности в трех сериях экспериментов при давлениях 93, 247 и 480 ГПа приведены в табл. 1.

Таблица 1

№	Эксперимент			Расчет		
	R_0 , см	R_{min} , см	ρ , г/см ³	R_{min} , см	ρ , г/см ³	P , ГПа
1	1.5	0.81 ± 0.03	4.8 ± 0.3	0.82	4.68	93
2	1.5	0.72 ± 0.02	6.1 ± 0.3	0.716	6.15	247
3	1.35	0.59 ± 0.02	7.3 ± 0.5	0.588	7.39	480

3. УРАВНЕНИЯ СОСТОЯНИЯ ТВЕРДОЙ И ЖИДКОЙ ФАЗ АРГОНА

Обоснование формы многофазного уравнения состояния и метода отыскания его параметров дано в работах [12, 3, 4].

Для твердой и жидкой фаз выражения для свободной энергии имеют вид¹⁾

$$F_S = E_x(\rho) + RT \left[3 \ln(1 - e^{-\Theta/T}) - D(\Theta/T) \right], \tag{1}$$

$$F_L = E_x(\rho) + 3RT \ln(\Theta/T) - 3RT \ln \alpha(\rho, T), \tag{2}$$

где T и ρ — температура и плотность, R — газовая постоянная,

$$D(x) = 3x^{-3} \int_0^x \frac{x^3 dx}{e^x - 1}$$

— функция Дебая. Кривая упругого взаимодействия аппроксимируется зависимостью

$$E_x = \frac{3}{\rho_k} \sum_i a_i (\delta^{i/3} - 1)/i,$$

¹⁾ В настоящей работе вклад нулевых колебаний в уравнении состояния включен в $E_x(\rho)$.

где $\delta = \rho/\rho_k$, ρ_k — плотность при $P_x = \rho^2 dE_x/d\rho = 0$, a_i — эмпирические постоянные. Температура Дебая определяется зависимостью

$$\Theta = \Theta_0 \delta^{1/3} \sqrt{C_x^2 - 2nP_x/3\rho}, \quad C_x^2 = dP_x/d\rho,$$

Θ_0 и n — эмпирические параметры. Параметр

$$\alpha = (1+z)^{-1/2} \exp\{b - f(\delta)T_0/T\}$$

определяет меру отклонения тепловых и упругих свойств жидкости от твердой фазы. Здесь $z = lRT/(C_x^2 - 2nP_x/3\rho)$, b и l — постоянные, T_0 — температура плавления при $P = 0$, $f(\delta)$ — эмпирическая функция плотности. Для определенности она была принята в виде

$$f(\delta) = C_1 \frac{(\delta/\delta_0)^{r_1} - 1}{r_1} + C_2,$$

где C_1 , C_2 и r_1 — эмпирические постоянные, $\delta_0 = \rho_0/\rho_k$, ρ_0 — плотность жидкой фазы при T_0 .

При $T > 1$ эВ в Ag необходимо учитывать вклад электронной составляющей. Для диэлектриков эта составляющая имеет вид

$$F_{el} = -\frac{4kT}{\rho} \sqrt{n_p n_n} \left(\frac{2\pi m^* kT}{h^2} \right)^{1.5} \exp\left(-\frac{W}{2kT}\right), \quad (3)$$

где m^* — среднее геометрическое из эффективных масс электрона и дырки, n_p и n_n — орбитальное вырождение в зонах. В (3), как и в [3], принята зависимость энергетической щели от плотности в виде

$$W = W_0 \delta^{-\Gamma}, \quad m^* = m_0 \delta^{2/3-\Gamma},$$

где W_0 — ширина щели при нормальной плотности, m_0 — масса свободного электрона, Γ — эмпирическая постоянная, значение которой находится из условия наилучшего описания ударной адиабаты в области высоких температур.

Численные значения параметров приведены в табл. 2.

Таблица 2

Параметры уравнения состояния аргона

ρ_k ,	г/см ³	1.77	l	3
n		2	b	0.694
a_1 ,	ГПа	-105.73	δ_0	0.8
a_2 ,	ГПа	346.72	r_1	1
a_3 ,	ГПа	-383.72	C_1	1.7925
a_4 ,	ГПа	142.73	C_2	-0.0589
Θ_0 ,	К·с/км	78.65	W_0 , эВ	14.4
T_0 ,	К	83.8	Γ	1

4. СРАВНЕНИЕ РАСЧЕТНЫХ И ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫХ РЕЗУЛЬТАТОВ

Для определения давления, соответствующего измеренной в эксперименте плотности аргона, проводились газодинамические расчеты с использованием уравнений состояния материалов, имеющихся в конструкции, и уравнения состояния Ag из [3]. Из расчета также определялось значение плотности в полости сжатого вещества и траектория движения внутренней границы оболочки. В случае согласия экспериментальной и расчетной траекторий оценивалось значение средней плотности сжатого аргона. На рис. 3 и 4 приведены результаты расчетов для серии опытов с максимально достигнутым давлением. Как видно из рис. 3, рассчитанная траектория движения внутренней оболочки удовлетворительно согласуется с экспериментом. На рис. 4 показаны распределения давления и плотности аргона в полости на момент максимального сжатия. Среднее значение плотности и соответствующее ему давление отмечены на рисунке штрихпунктирными линиями. Из этого рисунка видно, что отклонение плотности от среднего значения составляет ~ 5%, а давления — ~ 11%.

На рис. 5 в координатах $P(\rho)$ показаны экспериментальные результаты по квазиизэнтропическому сжатию аргона до ~ 500 ГПа, которые сравниваются с расчетными изэнтропами с соответствующей эксперименту энтропией S/R . Наблюдается хорошее согласие расчетных изэнтроп и экспериментальных данных. Здесь же для сравнения приведены изотерма при 300 К и ударная адиабата жидкого Ag. Видно, что изэнтропы

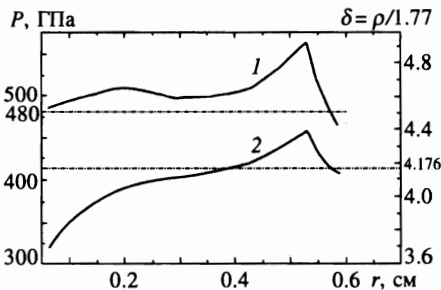


Рис. 4

Рис. 4. Распределение давления (1) и плотности (2) от радиуса на момент максимального сжатия аргона

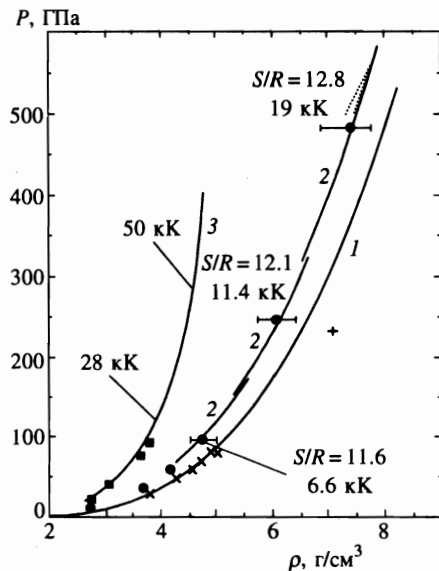


Рис. 5

Рис. 5. Изэнтропическое сжатие жидкого аргона. Эксперимент: ● — изэнтропическое сжатие настоящей работы; × — изотерма [1]; ■ — адиабата Гюгонио [2]. Расчет: 1 — изотерма $T = 300$ К; 2 — изэнтропы, 3 — адиабата Гюгонио; + — ЦК-ГПУ [10]

Таблица 3
 Рассчитанные величины в момент остановки оболочки

№	S/R	T , К	P_x , ГПа	P , ГПа	C , км/с
1	11.6	6600	64	93	8.4
2	12.1	11400	185	247	11.6
3	12.8	19000	360	480	14.4

проходят существенно «мягче» ударной адиабаты и приближаются к упругой кривой P_x . На рис. 5 пунктиром показано распределение состояния вещества по радиусу внутри оболочки в момент ее остановки. Видно, что более двух третей массы вещества имеет минимальную энтропию, значение которой указано на рисунке. Там же для сравнения приведены значения температуры на изэнтропе и на ударной адиабате, показывающие различие в степени нагрева в этих двух процессах.

В табл. 3 сведены значения энтропии, температуры, упругого и полного давлений и скорости звука для расчетных значений плотностей в трех экспериментальных точках. Из таблицы видно, что тепловое давление при изэнтропическом сжатии составляет 23–31% от полного. Приведенные в этой таблице значения скорости звука в аргоне в момент его максимального сжатия в каждом из опытов дают возможность оценить сверху длину торцевой области сжатого цилиндра, охваченной разгрузкой. Оценки, проведенные для конкретной конструкции, в которой достигнуто давление ~ 500 ГПа, показали, что разгрузкой охвачено не более 1.5 см сжатого объема с каждого торца при общей длине трубки сжатия ~ 10 см. Таким образом, область неразгруженного аргона составляет не менее 7 см.

Итак, в настоящей работе изэнтропа аргона продолжена в область давлений до ~ 500 ГПа, где нет других экспериментальных данных. Эти исследования, как и в работе [4], не показали видимых аномалий в сжимаемости жидкого аргона.

Литература

1. M. Ross, H. K. Mao, P. M. Bell, and J. A. Xu, J. Chem. Phys. **85**, 1028 (1986).
2. M. Ross, W. Nellis, and A. Mitchell, Chem. Phys. Lett. **68**, 532 (1979).
3. Ф. В. Григорьев, С. Б. Кормер, О. Л. Михайлова и др., ЖЭТФ **88**, 1271 (1985).
4. И. А. Адамская, Ф. В. Григорьев, О. Л. Михайлова и др., ЖЭТФ **93**, 647 (1987).
5. V. D. Urlyn, M. A. Mochalov, and O. L. Mikchailova, High Pressure Research **8**, 595 (1992).
6. A. P. Jephcoat, H. K. Mao, L. Finger et al., Phys. Rev. Lett. **59**, 2670 (1987).
7. R. Reichlin, K. Brister, A. McMahan et al., Phys. Rev. Lett. **62**, 669 (1989).
8. A. N. Zisman, I. V. Aleksandrov, and S. M. Stishov, Phys. Rev. **32**, 484 (1985).
9. K. A. Goettel, J. H. Eggert, and I. F. Silvera, Phys. Rev. Lett. **62**, 665 (1989).
10. A. K. McMahan, Phys. Rev. B **33**, 5344 (1986).
11. А. И. Павловский, Г. Д. Кулешов, Г. В. Склизов и др., ДАН СССР **160**, 68 (1965).
12. В. Д. Урлин, ЖЭТФ **49**, 485 (1965).