

УДК 534.222.2

Свойства жидкого аргона при ударном сжатии в области давлений 125–515 ГПа

В. К. Грязнов, М. В. Жерноклетов,
С. И. Киршанов, А. Б. Межевов,
М. А. Мочалов, А. Н. Шуйкин

С применением полусферических генераторов ударных волн на основной адиабате Гюгонио измерены плотность ударно-сжатого жидкого аргона ≈ 5 г/см³, температура ≈ 31300 К и коэффициенты поглощения света до ≈ 180 см⁻¹ при давлениях до ≈ 230 ГПа. При отражении ударной волны от сапфирового окна зарегистрирована плотность сжатого аргона $\approx 5,8$ и $7,1$ г/см³ при давлениях ≈ 300 и 530 ГПа соответственно. Проведен анализ полученных данных на основе различных теоретических моделей.

Введение

Интерес к изучению термодинамических и оптических свойств ударно-сжатых конденсированных благородных газов обусловлен возможностью экспериментального наблюдения электронного возбуждения, структурных переходов или их металлизации при высоких плотностях. Имея симметричную электронную структуру в атоме и плотную упаковку в кристаллическом состоянии, эти вещества удобны для теоретического описания их свойств и последующего сопоставления с экспериментом.

В настоящей работе в экспериментах с жидким аргоном получены экспериментальные данные по плотности, температуре и поглощению света в не исследованной ранее области давлений, достигающей 230 ГПа на основной адиабате Гюгонио и 530 ГПа в ударной волне, отраженной от сапфирового окна.

Измерение динамических характеристик

Для ударно-волновых экспериментов с жидким аргоном при давлениях выше 100 ГПа разработаны экспериментальные устройства, состоящие из полусферических генераторов ударных волн типа МЗ-4 и МЗ-8 [1] и криогенных кювет. Фрагмент измерительного узла криогенной кюветы приведен на рис. 1.

В центральное отверстие держателя А со световым диаметром 5 мм вклеено сапфировое окно 1, через которое оптическим пирометром регистрировалось излучение фронта ударной волны. Скорость ударной волны в жидком аргоне измерялась электроконтактным и оптическим базисными методами. В первом случае для измерения времени движения ударной волны использовалось 12 пар контактов 2, 3, 4, расположенных на известной базе. Во втором случае обработка данных проведена по осциллограммам излучения фронта ударной волны, которые регистрирова-

лись оптическим методом с помощью 12 световодов диаметром 400 мкм и дополнительно через оптическое окно из сапфира. Для регистрации скорости свободной поверхности полусферического ударника (на рисунке не показан) использовались 6 контактов 5, закрепленных в экране 6. Такая постановка эксперимента позволяет по совокупности полученных данных измерить среднюю скорость ударной волны в аргоне с точностью 2–3 % в отдельном опыте.

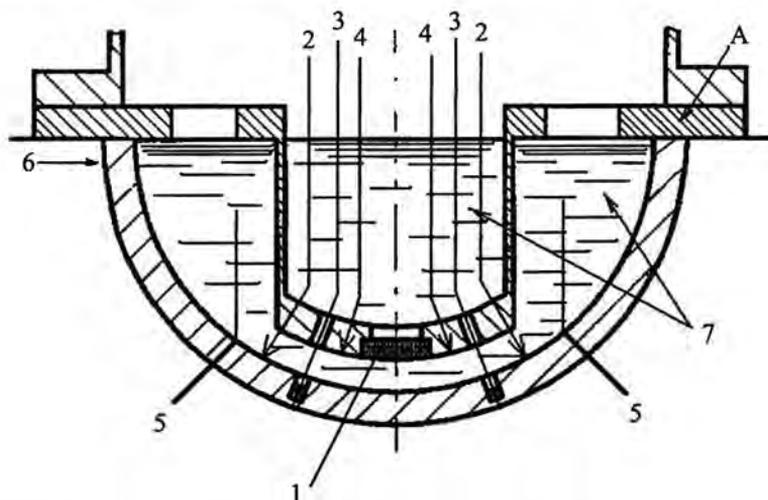


Рис. 1. Центральная часть: 1 – окно из сапфира; 2, 3, 4 – электроконтакты для измерения скоростей УВ в алюминиевом экране и аргоне; 5 – датчики для измерения скорости движения полусферического ударника; 6 – экран; 7 – жидкий аргон

Жидкий аргон получали в отдельном ожижителе и заливали в криостат непосредственно перед опытом. Воздух вокруг ячейки с жидким азотом откачивался до остаточного давления не выше $\sim 10^{-2}$ торр. Начальная температура жидкого аргона $T_0 = 87$ К контролировалась калиброванным платиновым термометром. Измеренной температуре T_0 соответствует плотность жидкого аргона $\rho_0 = 1,4$ г/см³.

Типичная осциллограмма излучения фронта ударной волны в жидком аргоне, зарегистрированная через окно из сапфира (длина волны $\lambda = 500$ нм), приведена на рис. 2.

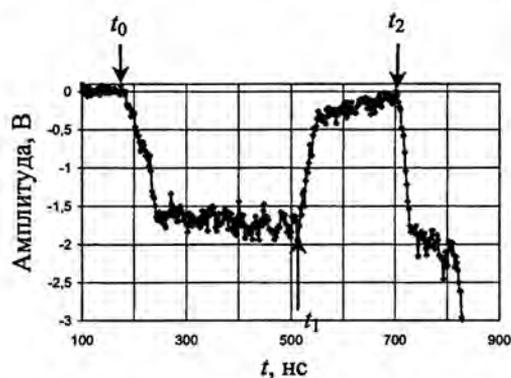


Рис. 2. Осциллограмма излучения фронта ударной волны в эксперименте с генератором полусферических ударных волн МЗ-4

Время движения ударной волны в сжиженном газе $\Delta t_{Ar} = (t_1 - t_0)$ определялось от момента появления свечения фронта (t_0) и до отсечки излучения (t_1) на поверхности сапфирового окна (или на торце световода), а время движения по сапфиру $\Delta t_{sap} = (t_2 - t_1)$ определялось от момента отсечки излучения (t_1) до момента начала свечения фронта ударной волны в жидкость (t_2) после прохождения окна.

В соответствии с методом отражения для определения по измеренному значению скорости ударной волны в аргоне давлений и массовых скоростей в прямой и отраженной волне необходимо решить задачу о распаде произвольных разрывов, образующихся при выходе ударной волны на границы разделов алюминий – аргон и аргон – сапфир. В экспериментах с генераторами ударных волн плоской геометрии такая задача решается просто. Для этого необходимо измерить скорости ударных волн в исследуемом веществе, экране и сапфире и знать уравнения состояния экрана и сапфира. Особенностью опытов со сферическими генераторами является рост скорости ударной волны в исследуемом образце и элементах экспериментального устройства при движении волны к центру. Измеренные в экспериментах значения средних скоростей ударных волн имеют смысл лишь для радиусов $R_{изм}$, находящихся на серединах баз измерения в соответствующих конструкциях. В настоящей работе параметры ударно-сжатого жидкого аргона находились из законов сохранения на границе распада разрыва, формально перенесенной на радиус измерения скорости ударной волны в аргоне $R_{изм. Ar}$. Для этого наряду с измерением скорости ударной волны в аргоне измерялась скорость ударной волны в экране экспериментального устройства, значение которой далее расчетным способом корректировалось к значению на радиусе $R_{изм. Ar}$. Этот вариант обработки данных представляется оправданным, поскольку результаты для жидкого аргона получены в не исследованной ранее области параметров, а состояние в экране (алюминий АД1) в этой области давлений хорошо известно. Компьютерное моделирование экспериментов выполнено по одномерной газодинамической программе ВНИИЭФ. В расчетах использовались уравнения состояния материалов экспериментального устройства в форме Ми-Грюнайзена. Учитывалось охлаждение элементов экспериментального устройства до температуры жидкого аргона $T_0 = 87$ К. Параметры ударной адиабаты для алюминия взяты из работы [2]; для сапфира использовано $D-U$ соотношение из работы [3].

В табл. 1 приведены измеренные значения скоростей ударных волн в экранах и скорректированные к радиусу $R_{изм. Ar}$ параметры ударных волн в алюминии, из которых методом отражения определялись параметры ударных волн в жидком аргоне.

Таблица 1

Параметры на основной ударной волне

ГУВ	Измеренная скорость ударной волны в экране		Скорректированные параметры ударной волны в экране на радиусе $R_{изм. Ar}$			Параметры ударной волны в жидком аргоне				
	$R_{изм. Al}$, мм	D , км/с	D	U	P , ГПа	$R_{изм. Ar}$, мм	D	U	P , ГПа	ρ , г/см ³
МЗ-4	32,75	12,91±0,26	13,65	6,20	232	29	11,92±0,15	8,08	135	4,34
МЗ-8	21,65	14,90±0,44	16,58	8,57	390	17,6	15,27±0,23	10,90	233	4,90

D - U параметры, полученные при формальном переносе границы экрана на радиус измерения средней скорости ударной волны в жидком аргоне, приведены на рис. 3 вместе с данными [4–6]. Вся совокупность результатов аппроксимирована двумя зависимостями

$$D = 0,971 + 1,922U - 0,079U^2; \quad U \leq 3,84 \text{ км/с}; \quad (1)$$

$$D = 2,82 + 1,137U \quad \text{при } U > 3,84 \text{ км/с}. \quad (2)$$

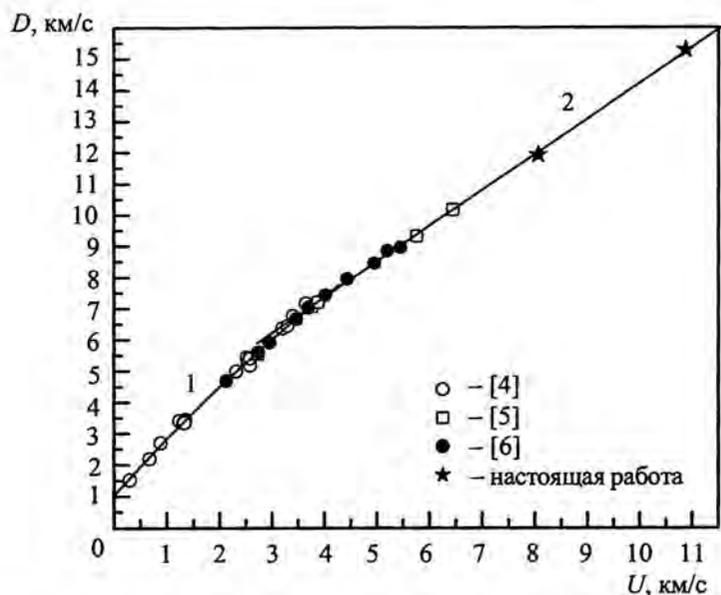


Рис. 3. Адиабата Гюгонио жидкого аргона в D - U координатах: 1 – аппроксимация по формуле (1); 2 – аппроксимация по формуле (2)

При отражении от сапфирового окна с начальной плотностью $\rho_0 = 4,02 \text{ г/см}^3$ проходящей в аргоне ударной волны формируется отраженная ударная волна, которая распространяется обратно в область аргона (Ar1). Давление в отраженной волне P_2 , равное давлению в сапфире P_{sap} , находится по измеренному значению скорости ударной волны и известной адиабате сапфира. В табл. 2 приведены параметры ударных волн в сапфире и аргоне на единой границе сапфир–Ar1, определенные из законов сохранения массы и импульса для отраженных волн и моделирования экспериментов, как и ранее, с помощью одномерной газодинамической программы.

Таблица 2

Параметры прямых и отраженных ударных волн в жидком аргоне

ГУВ	Параметры ударных волн в сапфире					Исходные параметры ударных волн в жидком аргоне				Параметры отраженных ударных волн в жидком аргоне			
	$R_{\text{изм}}$, мм	D	$D_{\text{кор}}$	U	P , ГПа	D_1	U_1	P_1 , ГПа	ρ_1 , г/см ³	D_{12}	ΔU_{12}	P_2 , ГПа	ρ_2 , г/см ³
		км/с				км/с				км/с			
МЗ-4	25,6	14,09	13,86	5,35	298	12,31	8,34	144	4,34	11,87	2,99	298	5,80
МЗ-8	14,34	16,89	16,43	8,04	531	16,25	11,81	268,7	5,12	13,59	3,77	531	7,08

Измерение оптических характеристик

Для измерения температур использован высокоскоростной пирометр видимого диапазона спектра. Излучение фронта ударной волны в жидком аргоне регистрировалось фотоумножителем (ФЭУ) на длинах волн $\lambda = 600, 550, 498, 450$ и 406 нм, выделяемых интерференционными светофильтрами с амплитудой пропускания $\sim 50\%$ и полосой $\Delta\lambda \approx 10$ нм на уровне половины от максимального значения. Для ослабления излучения использовались нейтральные светофильтры, пропускание которых измерено экспериментально на спектрофотометре DR-4000U. Задача нахождения температуры T и ϵ излучательной способности по спектральным потокам, измеренным в эксперименте, решалась с использованием нелинейного метода наименьших квадратов для модели с параметрами T и ϵ . Поток теплового излучения для измеренных спектральных температур вычислялся по формуле Планка

$$N(\lambda, T) = \epsilon C_1 \lambda^{-5} \left[\exp\left(\frac{C_2}{\lambda T}\right) - 1 \right]^{-1} = C_1 \lambda^{-5} \left[\exp\left(\frac{C_2}{\lambda T_s}\right) - 1 \right]^{-1}$$

Здесь ϵ – излучательная способность тела; λ – длина волны; T – истинная температура; T_s – яркостная температура; постоянные $C_1 = 1,19 \cdot 10^{-16}$ Вт·м²/ср и $C_2 = 0,0144$ мК.

Значения измеренных спектральных температур приведены в табл. 3. Там же указаны значения истинных температур T и величины излучательной способности ϵ .

При экспериментальном измерении коэффициента поглощения света основное внимание обращается на начальный участок нарастания интенсивности излучения, продолжительность которого составляет ~ 100 нс. Нарастание яркости свечения, как и в работе [8], связывалось с увеличением слоя вещества, сжатого ударной волной и имеющего коэффициент поглощения (усредненный) α . Как свидетельствуют эксперименты, в жидком аргоне при давлениях до ≈ 250 ГПа коэффициент поглощения света изменяется от ≈ 3 до 180 см⁻¹. Аппроксимационная зависимость

$$\text{этих данных имеет вид } \ln \alpha = (5,71 \pm 0,10) - (1,70 \pm 0,07) \left(\frac{10^4}{T} \right)$$

Таблица 3

Температура ударно-сжатого жидкого аргона

λ , нм	МЗ-4				МЗ-8			
	T_s , К	T , К	ϵ	P^* , ГПа	T_s , К	T , К	ϵ	P^* , ГПа
406	18125	24580±1700	0,570±0,066	125	17349	31270±2440	0,309±0,037	206
450	–				16368			
498	17815				15863			
550	17626				17229			
600	16433				14856			

P^* – значения давлений, приведенные к границам экранов.

Сравнение с результатами теоретических расчетов

Новые и имевшиеся ранее данные в координатах давление–плотность и температура–давление приведены соответственно на рис. 4 и 5. Там же показаны результаты расчета основной адиабаты Гюгонио и адиабаты вторичного сжатия по моделям [6] и [9].

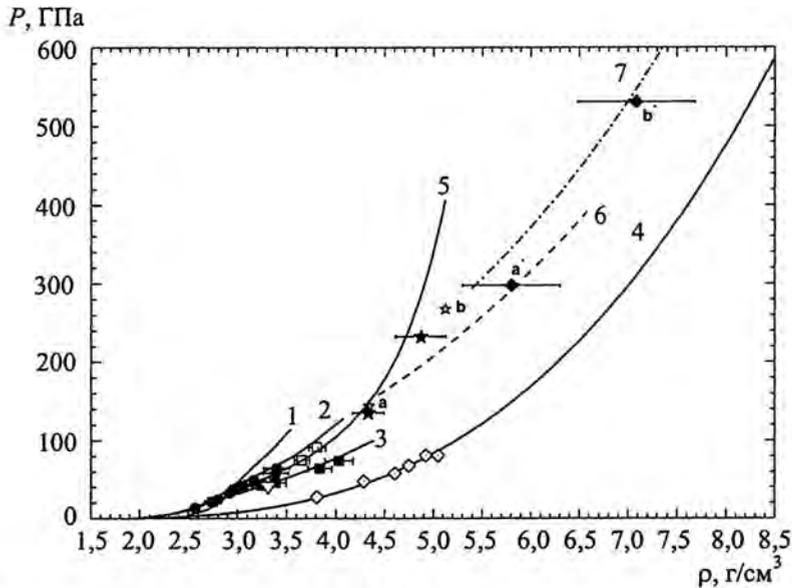


Рис. 4. Ударная адиабата жидкого аргона $\rho_0 = 1,4 \text{ г/см}^3$. Эксперимент: ★ – настоящая работа – на основной адиабате; ◆ – настоящая работа – на отраженной адиабате; □ – [5]; ● – [6]; ▽ – [6] – на отраженной адиабате; ■ – [7] – на отраженной адиабате; ◇ – [11]. Расчет: 1, 2, 3, 4 – [6]; 5, 6, 7 – настоящая работа

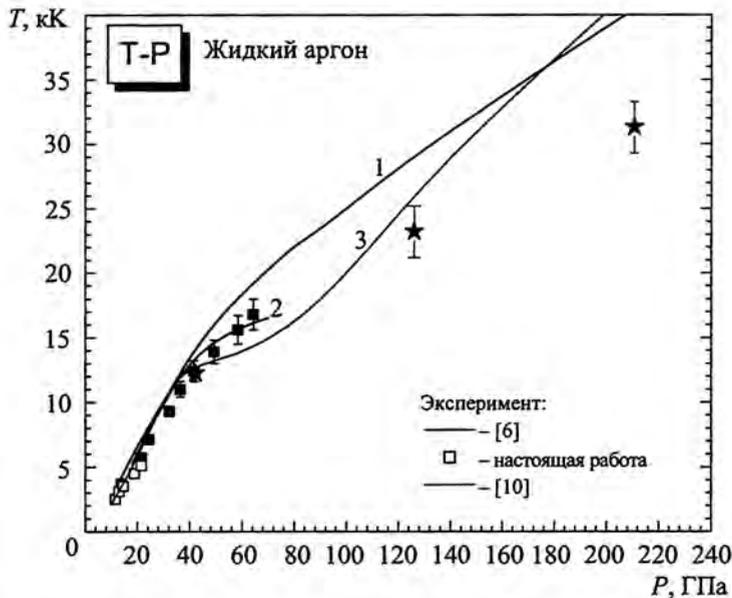


Рис. 5. Температура в ударно-сжатом жидком аргоне. Расчет [6]: 1 – с учетом возбуждения электронов; 2 – эффективная температура в красной области спектра ($\lambda = 670 \text{ нм}$); 3 – модель SAHA IV

В работе [6] форма уравнения состояния аргона в твердой и жидкой фазах принята по аналогии с ранее разработанными полуэмпирическими УРС металлов. При этом не выделялся вклад нулевых колебаний в давление и энергию.

Расчет в работе [9] выполнен в рамках модифицированной химической модели плазмы с использованием универсального кода SAHA-IV. В рамках этой модели аргон рассчитывался как сильно неидеальная смесь ионов, электронов и атомов. При расчете равновесного состава плазмы и ее термодинамических свойств учитывались эффекты частичного вырождения электронной компоненты и взаимодействия между всеми сортами частиц. Для описания кулоновской неидеальности использовалась усовершенствованная модификация псевдопотенциального подхода.

Эффективная глубина указанного потенциала приравнялась значению энергии взаимодействия электрон-ионной пары на среднем расстоянии между тяжелыми частицами (ионами и атомами). Это соответствовало принятой в данной модели граничной энергии, разделяющей свободные и связанные (внутриатомные) состояния, учитываемые при расчете атомных статистических сумм. Помимо вклада кулоновского взаимодействия заряженных частиц учитывался эффект интенсивного отталкивания тяжелых частиц на близких расстояниях. Это осуществлялось с использованием приближенного уравнения состояния "мягких сфер", модифицированного для смеси частиц разных диаметров. При этом степень "мягкости" в указанном потенциале межмолекулярного отталкивания выбиралась, исходя из требования наилучшего описания экспериментально измеренного уравнения состояния аргона при комнатной температуре.

Как видно из рис. 4, полуэмпирическое уравнение состояния аргона [6] без учета возбуждения электронов (кривая 1) описывает данные только до давлений ≈ 36 ГПа (360 кбар); ударная адиабата 2, учитывающая термическое возбуждение электронов, описывает совокупность экспериментальных данных в области давлений до 100 ГПа. Расчеты, выполненные с использованием универсального кода SAHA IV [9], удовлетворительно описывают данные как на основной, так и на отраженной адиабатах Гюгонно до давлений 530 ГПа.

Применение метода ударного сжатия для изучения свойств конденсированных благородных газов привело к открытию электронного возбуждения в жидком аргоне при одновременном воздействии высоких давлений и температур [4–6], что позволило удовлетворительно описать экспериментальные $P(\rho)$ данные в исследованной области давлений. Однако даже с учетом возбуждения электронов модельное уравнение аргона из работы [6] не описало экспериментальные значения температур (кривая 1 на рис. 5), что свидетельствует о большей чувствительности температурных измерений для тестирования модельных уравнений состояния, чем $D(U)$ данные. Хорошее согласие экспериментальных и рассчитанных температур в работе [6] получено при учете экранирования излучения на фронте ударной волны «холодными» электронами (кривая 2 на рис. 5).

Расчитанная по модели SAHA IV зависимость температуры от давления (кривая 3 на рис. 5) удовлетворительно описывает экспериментальные данные в диапазоне давлений до 130 ГПа. Однако при более высоких давлениях имеется количественное различие, которое требует дальнейших усовершенствований модели для корректного описания результатов в области сверхплотных плазменных состояний.

Список литературы

1. Альтшулер Л. В., Трунин Р. Ф., Крупников К. К., Панов Н. В. Взрывные экспериментальные устройства для исследования сжатия веществ в ударных волнах // УФН. 1996. Т. 166, № 5. С. 575.
2. Гордеев Д. Г., Гударенко Л. Ф., Куделькин В. Г. Модель уравнения состояния с переменной теплоемкостью ядер и электронов с учетом температуры Дебая. Уравнения состояния бериллия и алюминия // Вопросы атомной науки и техники. Сер. Теоретическая и прикладная физика. 2005. Вып. 1/2. С. 51–64.

3. Erskine D. in High-Pressure Science and Tecnology-1993, edited by S.C. Schmidt et al. // AIP Conference Proceeding 620, New York, 1994. P. 141–143. Conference Proceeding 620. New York. 1994. P. 141–143.
4. M.van Thiel, Alder B. J. Shock Compression of Argon // J. Chem. Phys. 1966. Vol. 44. P. 1056.
5. Nellis W., Mitchell A. Shock compression of liquid argon, nitrogen, and oxygen to 90 GPa (900 kbar) // J. Chem. Phys. 1980. Vol. 73. P. 6137.
6. Григорьев Ф. В., Кормер С. Б., Михайлова О. Л. и др. Ударное сжатие и яркостная температура фронта ударной волны в аргоне. Электронная экранировка излучения // ЖЭТФ. 1985. Т. 88. С. 1271., а также Sov. Phis. JETP. 1985. Vol. 61. P. 751.
7. Seitz W., Wacherle W. Reflected-Shock Hugoniot for liquid argon between 0.26 and 0.74 Megabars // Bull. Amer. Phys. Soc. 1972. Vol. 17. P. 1093.
8. Кормер С. Б. Оптические исследования свойств ударно-сжатых конденсированных диэлектриков // УФН. 1968. Т. 94. С. 641.
9. Фортов В. Е., Терновой В. Я., Жерноклетов М. В. и др. Ионизация давлением неидеальной плазмы в мегабарном диапазоне динамических давлений // ЖЭТФ. 2003. Т. 124. Вып. 2(8). С. 288–309.
10. Воскобойников И. М., Гоголя М. Ф., Долгобородов Ю. А. Температуры ударного сжатия жидкого азота и аргона // ДАН СССР. 1979. Т. 246, № 3. С. 579.
11. Ross M., Mao H. K., Bell P. M., Xu J. A. The equation of state of dense argon: A comparison of shock and static studies // J. Chem. Phys. 1986. Vol. 85(2). P. 1028.

Properties of Liquid Argon at Shock Compression in Pressure Range of 125–515 GPa

V. K. Gryaznov, M. V. Zhernokletov, S. I. Kirshanov,
A. B. Mezhevov, M. A. Mochalov, A. N. Shuikin

With use of semispherical generators of shock waves (SWG) for the basic Hugoniot adiabat, we measured density of shock-compressed liquid argon of $\approx 5 \text{ g/cm}^3$, temperature of $\approx 31300 \text{ K}$, and coefficients of light absorption up to $\approx 180 \text{ cm}^{-1}$ at pressures up to $\approx 230 \text{ GPa}$. Densities of compressed argon of ≈ 5.8 and 7.1 g/cm^3 were recorded at pressures of ≈ 300 and 530 GPa , respectively, during reflection of shock wave from sapphire window. The obtained data were analyzed basing on various theoretical models.