

УДАРНО-ВОЛНОВОЕ СЖАТИЕ АЗОТНОГО ФЛЮИДА В ДИАПАЗОНЕ ДАВЛЕНИЙ 140–250 ГПа

M. B. Жерноклетов^a, A. E. Ковалев^a, M. Г. Новиков^{a,c*}, B. K. Грязнов^b,

I. L. Иосилевский^{d,e}, A. B. Шутов^b

^a Российский федеральный ядерный центр –
Всероссийский научно-исследовательский институт экспериментальной физики
607188, Саров, Нижегородская обл., Россия

^b Федеральный исследовательский центр проблем химической физики и медицинской химии
142432, Черноголовка, Московская обл., Россия

^c Нижегородский государственный технический университет им. Р. Е. Алексеева
603950, Нижний Новгород, Россия

^d Объединенный институт высоких температур Российской академии наук
125412, Москва, Россия

^e Московский физико-технический институт
141700, Долгопрудный, Московская обл., Россия

Поступила в редакцию 7 сентября 2022 г.,
после переработки 28 сентября 2022 г.
Принята к публикации 28 сентября 2022 г.

Обсуждаются результаты серии опытов по ударному сжатию плотного азотного флюида, предварительно статически скатого до начальной плотности $\rho = 0.8, 0.65, 0.5 \text{ г}/\text{см}^3$, до давлений 140–230 ГПа на генераторах ударных волн полусферической геометрии. Эксперименты проведены в продолжение и развитие предыдущей серии опытов, также выполненных во ВНИИЭФ (Саров) в 2008–2010 гг., по ударному сжатию жидкого азота до давлений 100–330 ГПа. Целью настоящих экспериментов была проверка и подтверждение выявленной ранее величины предельного сжатия азота до предела, близкого к идеально-газовому, $\rho_0/\rho \approx 4.2$, и примечательного последующего квазизохорического хода ударной адиабаты в указанном интервале давлений 100–330 ГПа. Полученные экспериментальные данные сравниваются с результатами теоретических расчетов, использующих различные модели уравнения состояния неидеальной азотной плазмы.

DOI: 10.31857/S0044451023020128

EDN: OQXJCL

1. ВВЕДЕНИЕ

Интерес к физическим свойствам скатого и разогретого азота связан прежде всего со значительным присутствием азота в природе, в том числе в земной атмосфере, в планетах-гигантах солнечной системы и в так называемых экзопланетах (внешнебесных планетах) [1]. Он связан также и с техническими применениями как самого азота, так и его соединений в качестве сверхтвердых и тугоплав-

ких материалов и, кроме того, в качестве одного из основных компонентов бризантных конденсированных взрывчатых веществ. Наконец, с плотным горячим азотом также связана интригующая идея прикладного использования метастабильного состояния полимерного азота в качестве гипотетического высококалорийного топлива для широкого круга приложений [2, 3].

Как известно, молекулярный азот характеризуется высокой энергией диссоциации молекулы N_2 ($D_{N_2} = 9.76 \text{ эВ}$), близкой к энергии ионизации атома ($I_N = 14.5 \text{ эВ}$), в отличие от водорода, где две соответствующие энергии различаются гораздо больше ($D_{H_2} = 4.48$, $I_H = 13.6 \text{ эВ}$). Это делает азотную систему весьма устойчивой к внешним динамиче-

* E-mail: mephodynull@yandex.ru

ским воздействиям и, в частности, к интенсивным ударным и изоэнтропическим воздействиям. Гораздо важнее главное структурное отличие азота, связанное с наличием у него трех электронов, способных формировать ковалентные связи, что дает азоту возможность создавать богатую (в сравнении с водородом) номенклатуру связанных структур помимо простой бинарной молекулы N_2 и, в частности, создавать многоатомные фрагменты «полимерных» структур, реализующихся как в твердой, так и во флюидной фазах плотного и сверхплотного азота. Последнее особенно важно для реализации и интерпретации результатов динамических экспериментов с интенсивным многократным сжатием азота.

Термодинамические параметры ударного сжатия жидкого азота неоднократно измерялись экспериментально с достижением все более и более высокого уровня давлений сжатия [4–11]. В частности, в последних экспериментах ВНИИЭФ [10, 11] был достигнут максимальный уровень давлений ударного сжатия, $P \approx 350$ ГПа, в области давлений 100–130 ГПа было зафиксировано сжатие азота до степени сжатия $\sigma \approx 4.2$, близкой к идеально-газовой ($\sigma_{i.g.} \approx 4$). Кроме того, в экспериментах [10, 11] было зафиксировано, что при давлении $P \approx 100$ ГПа зависимость $P(\rho)$ на ударной адиабате резко меняет характер своего изменения и при более высоких давлениях (100 ГПа $\leq P \leq 330$ ГПа) демонстрирует примечательный практически изохорный характер, существенно отличный как от результатов ударного сжатия при более низких давлениях [11], так и от хода ударной адиабаты, предсказанной в модельных расчетах с использованием УРС OPAL [12]. Кроме того, в экспериментах [11] была зафиксирована примечательная линейность экспериментально измеренной зависимости температуры ударно-сжатой плазмы азота от давления, $T(P)$.

Указанные результаты экспериментов [10, 11] ставят два актуальных вопроса.

1) Какой физический механизм отвечает за резкий излом хода ударной адиабаты жидкого азота $P(\rho)$ с пологого на квазизохорический в районе $P \approx 1$ Мбар, $\rho \approx 3.3$ г/см³ и $T \approx 10$ –20 кК?

2) Какой физический механизм отвечает за саму квазизохоричность участка ударной адиабаты в интервале $P \approx 1$ –3.5 Мбар?

Одной из главных целей настоящих экспериментов являлась проверка и ожидаемое подтверждение или же коррекция указанной изохорности ударной адиабаты с начальной плотностью $\rho_0 \approx 0.8$ г/см³.

Второй, сопутствующей первой, целью опытов является проверка зафиксированной в эксперимен-

тах [11] линейной связи экспериментально измеренных температуры и давления в том же интервале давлений $P \approx 1$ –3.5 Мбар (при $T \approx 15$ –55 кК).

Наконец, третьей важной целью является расширение совокупности параметров, достижимых при ударном сжатии, за счет изменения начальной плотности сжимаемого азотного флюида. Это важно для поиска возможных особенностей ударного сжатия азота в более широкой области параметров, нежели это позволяли эксперименты [10, 11] со сжатием изначально жидкого азота.

Если обратиться к вопросам физики процессов, реализующихся при интенсивном ударном сжатии азота, то наиболее ярким и удивительным феноменом, зафиксированным уже достаточно давно еще в пионерских экспериментах [6–8], является «ударное охлаждение» плотного азотного флюида. В этих экспериментах при сжатии азота падающей ударной волной до давлений $P = 30$ –40 ГПа (и $T = 8$ –10 кК), температура за волной, отраженной от оптических окон (Al_2O_3 , LiF) и сжимающей азот до давлений $P \sim 1$ Мбар, оказалась заметно ниже, чем за падающей волной, что не запрещено законами термодинамики, но крайне необычно и требует объяснений.

Среди попыток такого объяснения этого эффекта очень важными были предположения о существовании в плотном азотном флюиде в этом диапазоне параметров обширной зоны с более общей аномалией — отрицательностью (обычно положительного) термодинамического параметра Грюнайзена $Gr = V(\partial P / \partial E)_V$ [13]. Детальный анализ проблемы отрицательности параметра Грюнайзена в результатах ударно-волновых экспериментов содержится в работах [14–18]. В частности, в работе [15] подчеркивается, что причины возможного отрицательного эффективного коэффициента Грюнайзена могут быть связаны с размытыми фазовыми превращениями. Так, в свою очередь, указанная отрицательность параметра Грюнайзена в экспериментах [6, 8] была интерпретирована как доказательство достижения в ударной волне примечательного явления, предсказанного еще в пионерских работах [13, 19], а позже в работе [12] и широко обсуждаемого с тех пор возникновения в условиях динамического сжатия обширной зоны гипотетической полимеризации плотного азота — сплошной полимеризации в низкотемпературной твердой фазе [20] и кусочно-фрагментарной полимеризации азота в высокотемпературной флюидной фазе [21, 22]. Важно, что это происходит при температурах и давлениях, соответствующих зоне, достигаемой в настоящем эксперименте и в предыдущих экспериментах [10, 11].

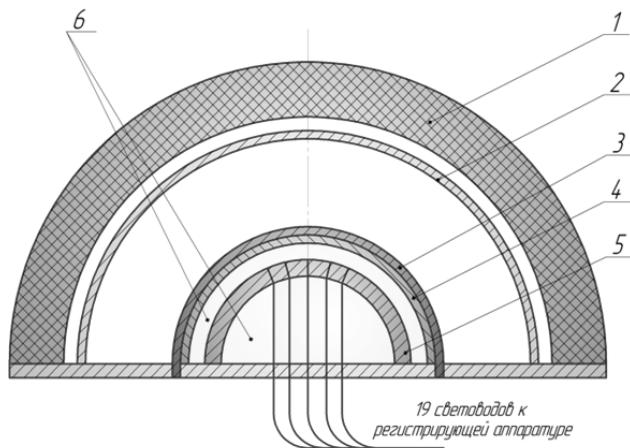


Рис. 1. Схема экспериментального устройства: 1 — заряд ВВ; 2 — ударник (сталь Ст3); 3 — внешний экран (сталь ХН35ВТЮ-ВД); 4 — внутренний экран (АД1); 5 —латунная обойма; 6 — исследуемый газ (N_2)

Предсказания конкретных параметров зоны существования в плотном азотном флюиде особой «полимерной» фазы с заметной долей полимерных фрагментов были в значительной мере гипотетическими и достаточно неопределенными. Общим для этих работ было предсказание существования некой гипотетической границы фазового перехода первого рода, разделяющей область существования обычной молекулярной фазы (N_2) и полимерной фазы. Главным, с точки зрения термодинамики, в работе [12] было предсказание в полимерной фазе аномального свойства — отрицательного знака параметра Грюнайзена и связанного с ним коэффициента теплового расширения плотного полимерного азотного флюида.

Более определенными и авторитетными в вопросе о необычном фазовом переходе в плотном азотном флюиде были результаты относительно недавнего прямого численного моделирования в рамках строгого подхода *ab initio*, реализованного в работах [23–25], где существование необычного фазового перехода флюид–флюид «энтропийного» типа с «падающей» $P(T)$ границей (обсуждение этого термина см. в [17, 18]) было предсказано при относительно низких температурах, соответствующих критической температуре $T_c \approx 4000$ К, достаточно далекой от параметров, достижимых при ударном сжатии жидкого азота. В работах [17, 18] подчеркивалось, что помимо самого «энтропийного» фазового перехода [23, 24] не менее важной является всегда сопутствующая ему зона аномальной термодинамики (ATR), как бы продолжающаяся, но уже безразрывно, границу самого фазового перехода в область более высоких температур и плотностей. Именно эта «сопряженная» фазовому переходу зона ATR может быть вполне достижима при ударном сжатии

в ударно-волновых экспериментах ВНИИЭФ, что и подтверждилось позже в работе [24].

Таким образом, настоящие эксперименты дают возможность прямого сравнения результатов эксперимента реального с результатами «эксперимента численного» [23, 24], активно развивающегося в последние десятилетия. Важность такого сравнения объясняет необходимость максимального расширения области параметров, где такое сравнение может быть реализовано. Поэтому существенным является возможность широко варьировать начальную плотность азотного флюида (а не жидкого или твердого азота), максимально раздвигая доступную базу параметров диапазона возможного сравнения результатов эксперимента. Именно с этой целью в настоящей работе проведена серия экспериментов по ударному сжатию в диапазоне давлений 140–250 ГПа азотного флюида, предварительно статически сжатого до плотности $\rho = 0.8, 0.65, 0.5$ г/см³. Все полученные экспериментальные результаты сравниваются с результатами теоретических расчетов, использующих различные модели уравнения состояния неидеальной азотной плазмы.

2. ПОСТАНОВКА ЭКСПЕРИМЕНТА И РЕЗУЛЬТАТЫ ИЗМЕРЕНИЙ

В экспериментах с азотным флюидом высокой начальной плотности использовалась полусферическая камера, адаптированная к использованию в сочетании с полусферическими генераторами ударных волн, разработанными во ВНИИЭФ [10, 11]. Постановка опытов схематически показана на рис. 1.

После инициирования заряда взрывчатого вещества (ВВ) 1 его продукты детонации через воздушный зазор разгоняют стальную оболочку 2. При уда-

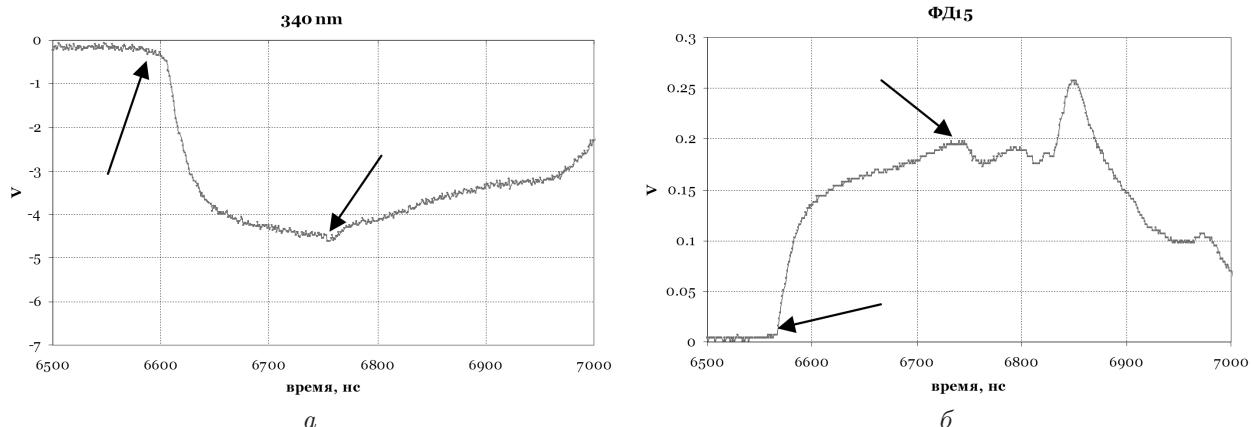


Рис. 2. Осциллограммы свечения фронта ударной волны в азотном флюиде в эксперименте при давлении 230 ГПа: *а* — сигнал фотоумножителя на длине волн 340 нм; *б* — сигнал фотодиода

ре оболочки по внешнему экрану 3 в нем возникает ударная волна, которая последовательно переходит во внутренний алюминиевый экран 4 и далее в исследуемый газ 6. Полость, образованная между оболочкой и внешним экраном, изготовленным из прочной стали ХН35ВТЮ-ВД, вакуумировалась. Для передачи светового потока с фронта ударной волны в латунной обойме 5 заподлицо закреплялись 19 световодов. Объем 6 заполнялся газообразным азотом из термокомпрессионного источника до давлений около 2700 кгс/см², необходимых для получения начальной плотности примерно 0.8 г/см³.

При регистрации свечения фронта ударной волны использовались преобразователи оптических сигналов видимого спектра излучения, выполненные на фотодиодах ФД256 и фотоэлектронных умножителях со временем нарастания анодного импульса 1.5 нс.

Время движения ударной волны в газе изменилось оптическим методом от момента появления свечения фронта до момента спада амплитуды свечения из-за повреждения торца световода ударной волной. Типичные осциллограммы свечения фронта ударной волны в азотном флюиде в эксперименте при давлении 230 ГПа приведены на рис. 2. Стрелками обозначены моменты выхода ударной волны из алюминиевого экрана в азот и момент прихода ударной волны на торец световода. Яркостная температура находилась усреднением сигнала с ФЭУ от момента образования оптически плотного излучающего слоя до отсечки излучения на торце световода.

Особенностью опытов со сферическими генераторами является рост скорости ударной волны в элементах экспериментального устройства при движении волны к центру. Измеренные в экспериментах значения средних скоростей ударных волн имеют смысл лишь для радиусов измерения R_{mes} , находя-

щихся на серединах баз измерения в соответствующих конструкциях [11, 26] (см. рис. 1). Поэтому параметры ударно-сжатого азота находились из законов сохранения на границе распада разрыва, формально перенесенной на радиус измерения скорости ударной волны в азоте R_{mes} , что требует определения состояний в экранах на этом же радиусе.

Для получения аналитических зависимостей изменения скорости ударной волны в элементах конструкции от радиуса, $D(R)$, и определения состояний в экранах на радиусе измерения R_{mes} использовались приведенные в работах [10, 11] параметры и динамические характеристики генератора ударных волн полусферической геометрии и выполнялось компьютерное моделирование экспериментов по одномерной газодинамической программе ВНИИЭФ.

Пересечения изоэнтроп расширения, рассчитанных из состояний в экранах на радиусах измерений R_{mes} , с волновыми лучами для измеренных скоростей ударных волн в азоте, согласно методу отражения, определяют давления и массовые скорости, а из закона сохранения массы находятся плотности ударно-сжатого азота. Параметры ударных волн в газе, в том числе его температура, приведены в таблице. На представленных ниже рис. 3–6 полученные данные сравниваются с результатами расчетов, а также с данными других авторов.

3. ВЫБОР ТЕОРЕТИЧЕСКИХ МОДЕЛЕЙ ДЛЯ СРАВНИТЕЛЬНЫХ РАСЧЕТОВ ПАРАМЕТРОВ ДИНАМИЧЕСКОГО СЖАТИЯ АЗОТА

Для проведения теоретического анализа результатов экспериментов и их сравнения были выбраны три теоретические модели уравнения состояния

Таблица. Параметры ударно-сжатого азотного флюида

Состояние в экране на радиусе R_{mes}			Состояние в азоте на радиусе R_{mes}					
D , км/с	U , км/с	P , ГПа	R_{mes} , мм	D , км/с	U , км/с	P , ГПа	ρ , г/см ³	T , кК
$\rho_0(N_2) = 0.808 \text{ г/см}^3$								
18.76	10.44	531	15.03	19.22 ± 0.32	14.8	229.8 ± 5.4	3.54 ± 0.29	45.90 ± 9.30
$\rho_0(N_2) = 0.786 \text{ г/см}^3$								
17.75	9.60	461	15.10	17.55 ± 0.36	13.78	190.0 ± 5.4	3.65 ± 0.37	37.50 ± 5.80
$\rho_0(N_2) = 0.650 \text{ г/см}^3$								
17.75	9.60	461	15.00	18.00 ± 0.63	14.6	170.8 ± 8.5	3.44 ± 0.50	29.40 ± 2.75
$\rho_0(N_2) = 0.510 \text{ г/см}^3$								
17.75	9.60	461	15.00	18.35 ± 0.60	15.1	141.3 ± 6.0	2.88 ± 0.58	17.20 ± 2.50
$\rho_0(N_2) = 0.500 \text{ г/см}^3$								
21.66	13.00	763	14.93	24.9 ± 0.40	19.7	245.0 ± 5.0	2.40 ± 0.20	—

Примечание: D — волновая скорость, U — массовая скорость, P — давление, R_{mes} — радиус измерения, ρ — плотность, T — температура.

(УРС), представляющие три различных подхода.

1) Хорошо известное и широко используемое в прикладных расчетах параметров динамического сжатия «широкодиапазонное» интерполяционное УРС SESAME [27].

2) Традиционный и хорошо зарекомендовавший себя в предыдущих работах [11, 28, 29] «квазихимический» способ описания, реализованный в коде SAHA-N из комплекса термодинамических кодов SAHA [30, 31].

3) Наиболее строгий, но и наиболее трудоемкий подход *ab initio*, сочетающий строгое описание при низких температурах вклада электронов с достаточно полным учетом квантовых эффектов в рамках теории функционала плотности с учетом при высоких температурах квантовых эффектов в рамках метода «интегралов по траекториям» в сочетании с прямым численным молекулярно-динамическим моделированием (QMD) вклада ионных степеней свободы. Для реализации этой процедуры в настоящей работе были использованы результаты расчета в работах [24, 25].

Основной теоретической моделью, с помощью которой были выполнены расчеты достигнутых параметров состояния ударно-сжатого азота и его термодинамических свойств, как и в предыдущей работе [11], была модель SAHA-N. Термодинамическое описание в этой модели построено на основе квазихимического представления (так называемая химическая модель плазмы) [30–32], описывающего азотный флюид как частично ионизован-

ную термодинамически равновесную плазму, состоящую из атомов, молекул N_2 и N_3 , атомных и молекулярных ионов азота (N^+ , N^{++} , N_2^+) и электронов, с сильным кулоновским взаимодействием и интенсивным короткодействующим отталкиванием тяжелых частиц, а также с частичным вырождением электронов. Данная модель, все исходные предположения которой строятся на микроскопическом уровне, успешно применялась для описания ударного сжатия молекулярных газов, в том числе и азота [11, 32, 33]. Для учета эффектов кулоновской неидеальности взаимодействия заряженных частиц использовалось модифицированное псевдопотенциальное приближение [32–34]. Для описания вклада интенсивного отталкивания тяжелых частиц на близких расстояниях (эффекта «собственного объема») в модели кода SAHA-N используется приближение «мягких сфер» [35], модифицированное на случай многокомпонентной смеси частиц, различающихся по своим «размерам» [34]. Характеристики короткодействующего отталкивания в парах молекула – молекула, атом – молекула и атом – атом, априори неопределенные, выбирались в соответствии с рекомендациями неэмпирического атом-атомного приближения [36–38]. Как уже отмечалось в работе [11], это приводило к эффекту «диссоциации давлением» за счет «выигрыша» в собственном объеме атомной компоненты по сравнению с молекулярной в процессе диссоциации последней. В настоящей работе в состав молекулярной составляющей, содержащей в работе [11] только двухатом-

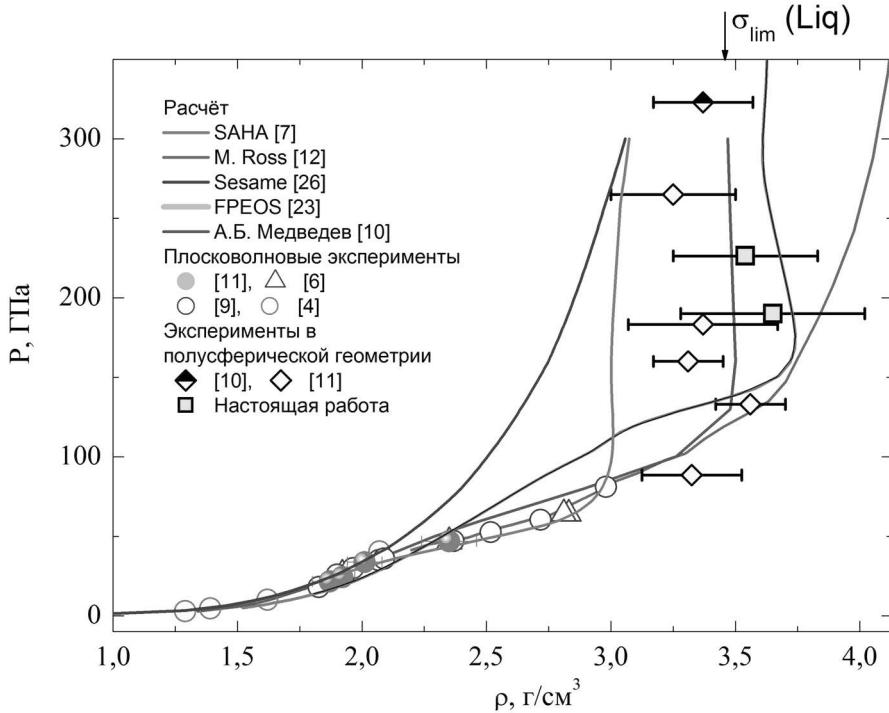


Рис. 3. Зависимость давления от плотности в ударно-сжатом азоте с начальной плотностью $\rho_0(N_2) \approx 0.8 \text{ г}/\text{см}^3$

ные комплексы, была включена молекула N_3 , параметры отталкивания для которой (размер молекулы и «мягкость» отталкивания) выбирались в соответствии с ее структурными данными [4, 39]. Учет вклада молекулы N_3 привел к более высокой сжимаемости неидеальной плазмы азота по сравнению с расчетами [11] при давлениях $P \leq 100 \text{ ГПа}$, что продемонстрировано на рис. 3.

4. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ СРАВНЕНИЯ ТЕОРЕТИЧЕСКИХ РАСЧЕТОВ С ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫМИ ДАННЫМИ

Согласно расчетам, проведенным с использованием кода SAHA-N, за фронтом ударной волны в азотном флюиде для экспериментов работ [10, 11] и в настоящей работе реализуются состояния плотной сильно неидеальной ($\Gamma_D = e^2/r_D kT > 1$, $\max \Gamma_D \approx 10$, e — заряд электрона, r_D — дебаевский радиус, k — постоянная Больцмана), частично ионизованной (соотношение концентраций электронов и атомов $n_e/n_a \sim 1$) и частично вырожденной ($\max n_e \lambda_e^3 \sim 3$, λ_e — тепловая длина волны де Броиля для электрона), плазмы азота, где при давлениях около 200 ГПа в составе плазмы присутствует уже заметная доля двукратных ионов азота N^{++} .

Наиболее важными в настоящих экспериментах представляются измерения параметров адиабаты Гюгонио с начальными плотностями $\rho_0(N_2) = 0.808 \text{ г}/\text{см}^3$ и $\rho_0(N_2) = 0.786 \text{ г}/\text{см}^3$. Рас-

четы показывают, что различие начальных плотностей в этих двух экспериментах незначительно, поэтому обе точки можно считать принадлежащими одной и той же ударной адиабате. Расчеты также показывают, что различие в давлении и энталпии исходного сжатого азотного флюида в настоящем эксперименте мало отличается от давления и энталпии исходного жидкого состояния азота, служившего начальным состоянием в прежней серии экспериментов ВНИИЭФ [10, 11]. Таким образом, обе обсуждаемые точки настоящих экспериментов законно считать принадлежащими одной и той же ударной адиабате, которая измерялась в работах [10, 11], поэтому сравнение результатов настоящего и предыдущих экспериментов представлено совместно на рис. 3.

Главный вывод, который позволяет сделать приведенное на рис. 3 сравнение, состоит в том, что результаты настоящего эксперимента со сжатием азотного флюида с $\rho_0(N_2) \approx 0.8 \text{ г}/\text{см}^3$ находятся в хорошем согласии с результатами экспериментов [10, 11] по сжатию жидкого азота ($T_0 \approx 77 \text{ К}$) и подтверждают (и усиливают) отмечавшийся ранее почти изохорический характер («свечу») этой адиабаты Гюгонио с $\rho \approx 3.3 \text{ г}/\text{см}^3$ в диапазоне давлений $90 \text{ ГПа} < P < 330 \text{ ГПа}$.

Как уже подчеркивалось ранее [40, 41], изохоричность адиабаты Гюгонио в этом диапазоне высоких давлений (где $P/P_0 \gg 1$) означает фактическое постоянство параметра Гройнайзена $Gr \equiv V(\partial P/\partial E)_V$,

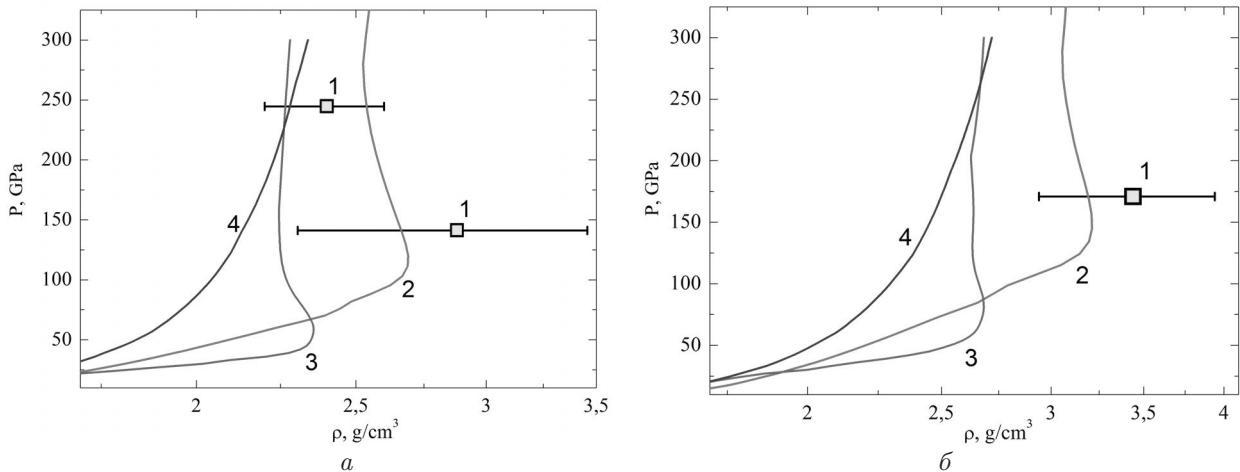


Рис. 4. Зависимости давления от плотности в ударно-сжатом азоте с пониженной начальной плотностью: *а* — $\rho_0(\text{N}_2) \approx 0.51 \text{ г}/\text{см}^3$; *б* — $\rho_0(\text{N}_2) \approx 0.65 \text{ г}/\text{см}^3$; 1 — настоящий эксперимент. Расчет: 2 — SAHA-N [11]; 3 — *ab initio* расчеты с УРС FPEOS [24]; 4 — УРС SESAME [27]

который в этом случае равен величине, зависящей лишь от степени сжатия плазмы ρ/ρ_0 . В настоящем эксперименте он оказался равен $Gr \approx 0.62$, что близко к идеально-газовому значению $Gr^0 = 2/3 \approx 0.67$ и следует из соотношения на адиабате Гюгонио

$$\begin{aligned} E_1 &= E_0 + \frac{1}{2} \left(\frac{1}{\rho_0} - \frac{1}{\rho_1} \right) (P_1 + P_0) \Rightarrow \\ &\Rightarrow Gr = V \left(\frac{\partial P}{\partial E} \right)_V = \text{const} \approx 0.62. \end{aligned} \quad (1)$$

Вопрос о физическом механизме, приводящем к такому значению параметра Грюнайзена в плазме азота при достигнутых параметрах, остается открытым. Именно в связи с этим важным следствием из приведенного на рис. 3 сравнения является тот факт, что ударная адиабата, рассчитанная в рамках подхода *ab initio* (FPEOS [23]), который по своему статусу претендует на роль тоже эксперимента, но «численного», также резко «ломается», но при меньшем давлении $P \approx 0.8 \text{ Мбар}$, и далее также имеет квазизохорический ход, но уже при плотности $\rho \approx 3 \text{ г}/\text{см}^3$, что заметно меньше плотности «свечи» реального эксперимента [10, 11]. Особенно важно, что ударная адиабата, полученная методом *ab initio*, лежит вне экспериментальной ошибки настоящего эксперимента. С учетом быстрого прогресса в возможностях и точности расчетов *ab initio* [23] это расхождение имеет принципиальный характер в соотношении экспериментов реального [10, 11] и численного [23, 24, 42].

Преимуществом техники генерации ударного сжатия азотного флюида в экспериментах настоящей работы является возможность расширить диапазон достижимых параметров плазмы азота за счет изменения начальной плотности. На рис. 4

приведено такое сравнение для адиабат с начальными плотностями $\rho = 0.51 \text{ г}/\text{см}^3$ и $\rho = 0.65 \text{ г}/\text{см}^3$. Главным выводом, который позволяет сделать приведенное сравнение с учетом рис. 3, является тот факт, что локация всех пяти новых экспериментальных точек свидетельствует о монотонности зависимости плотности ударно-сжатой плазмы от начальной плотности сжатия. Это свидетельствует об отсутствии самопересечений ударных адиабат, что, в свою очередь, являлось бы признаком попадания экспериментальных точек в область аномальной термодинамики, т. е. в зону отрицательного знака параметра Грюнайзена и большой группы других вторых перекрестных производных термодинамического потенциала [14, 17, 18].

Второй вывод из приведенного на рис. 4 сравнения экспериментальных данных с результатами расчетов по теоретическим моделям состоит в удовлетворительном согласии параметров экспериментальных точек с $\rho = 0.51 \text{ г}/\text{см}^3$ и $\rho = 0.65 \text{ г}/\text{см}^3$ с расчетами по УРС SAHA-N. В то же время расхождение экспериментальных и расчетных данных, полученных на основе УРС FPEOS [24] и интерполяционного УРС SESAME [27], существенно и выходит за пределы экспериментальной погрешности, декларируемой авторами настоящего эксперимента. Это особенно значимо в отношении расчетов на основании УРС FPEOS ввиду серьезной претензии данных, получаемых по методике FPEOS, на роль тоже эксперимента, но эксперимента «численного».

Наконец, последний важный вывод, следующий из сравнения, приведенного на рис. 4, состоит в том, что, как и в случае сжатия жидкого азота и азотного флюида с $\rho = 0.8 \text{ г}/\text{см}^3$, адиабаты на рис. 4, рассчитанные с помощью УРС FPEOS [24], отчетливо

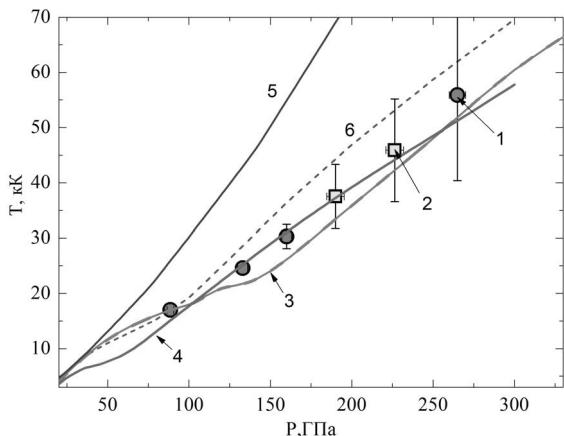


Рис. 5. Зависимости температуры ударно-сжатого азота с начальной плотностью $\rho_0(N_2) \approx 0.8 \text{ г}/\text{см}^3$ от давления. Эксперимент: 1 — сжатие жидкого азота [11]; 2 — сжатие азотного флюида (настоящий эксперимент). Расчет: 3 — SAHA-N с учетом молекул N_3 , 4 — расчеты *ab initio* (FPEOS [23]); 5 — UPC SESAME [27]; 6 — полуэмпирическая интерполяционная модель сжимаемого коволюма [10, 42]

распадаются на два участка — пологого роста при $P(\rho) \leq P^* \approx 50 \text{ ГПа}$ и крутого квазизохорического подъема («свечи») при $P(\rho) \geq P^*$ с резким изломом между этими двумя участками.

Таким образом, можно сделать важный вывод, что указанное комбинированное поведение (ход) ударных адиабат в плотной плазме азота воспроизводится как в реальном, так и в «численном» экспериментах, но при несовпадающих параметрах «свечи» с различием, заметно выходящим за рамки точности настоящего эксперимента. Вопрос о физической причине и механизме, ответственных за такое неожиданное поведение ударного сжатия в неидеальной плазме азота, остается открытым.

5. АНАЛИЗ РЕЗУЛЬТАТОВ ИЗМЕРЕНИЯ ТЕМПЕРАТУРЫ УДАРНО-СЖАТОЙ ПЛАЗМЫ АЗОТА

Важным преимуществом экспериментов по ударному сжатию жидкого азота в работе [11] и азотного флюида в настоящих экспериментах является реализация экспериментального измерения температуры сжатой плазмы. Как и ранее, измеренные температуры ударно-сжатого азотного флюида с начальными плотностями $\rho_0(N_2) = 0.808 \text{ г}/\text{см}^3$ и $\rho_0(N_2) = 0.786 \text{ г}/\text{см}^3$ считаются принадлежащими одной и той же ударной адиабате, той же самой, что и адиабата сжатия жидкого азота с начальной плотностью $\rho_0(N_2) = 0.8 \text{ г}/\text{см}^3$ [11]. По этой причине все указанные результаты показаны совместно на рис. 5 в координатах T - P .

На основании этого сравнения можно сделать вывод, что новые экспериментальные данные хорошо согласуются в T - P -координатах с прежними результатами, что подтверждает важный результат экспериментов [11] — линейность в диапазоне давлений $P \approx 1$ – 3.5 Мбар экспериментально измеренной зависимости $T(P)$ на ударной адиабате с начальной плотностью $\rho_0(N_2) = 0.8 \text{ г}/\text{см}^3$.

Вместе с ранее отмеченной изохоричностью этого участка ударной адиабаты указанная линейность зависимости $T(P)$ позволяет сделать несколько очень важных заключений о термодинамических свойствах плазмы азота в этом районе фазовой диаграммы [40].

На участке изохоры неидеальной плазмы азота с плотностью $\rho \approx 3.3 \text{ г}/\text{см}^3$ в диапазоне давлений $P \approx 1$ – 3.5 Мбар помимо уже отмеченного ранее постоянства параметра Грюнайзена в совокупности настоящих экспериментов и экспериментов работ [10, 11] зафиксировано примерное постоянство еще трех важнейших термодинамических характеристик, связанных с температурой:

- 1) постоянство величины производной $(\partial P / \partial T)_V$;
- 2) постоянство так называемого фактора сжимаемости плазмы $Z \equiv PV/RT$;
- 3) постоянство изохорной теплоемкости C_V :

$$\left(\frac{\partial P}{\partial T} \right)_V \approx \text{const} \approx 4.5 \frac{\text{ГПа}}{\text{К}}, \quad (2)$$

$$Z \equiv PV/RT \approx \text{const} \approx 2.7 \pm 0.2, \quad (3)$$

$$C_V \equiv \left(\frac{\partial E}{\partial T} \right)_V \approx \text{const} \approx 2.0 \frac{\text{Дж}}{\text{г} \cdot \text{К}}. \quad (4)$$

Следует подчеркнуть, что зафиксированное в совокупности настоящих и предыдущих экспериментов ВНИИЭФ [10, 11] высокое значение фактора сжимаемости неидеальной плазмы азота на адиабате $\rho_0 = 0.8 \text{ г}/\text{см}^3$, равное $Z \equiv PV/RT \approx 2.7$, достаточно далеко от этой величины как для идеального газа молекул N_2 ($Z = 0.5$), так и для идеального газа атомов N ($Z = 1$) или же для идеальной плазмы $N^+ + e^-$ ($Z = 2$). Это говорит о том, что даже при наличии идеальногазовых черт (2)–(4) плазма азота на изохоре $\rho \approx 3.3 \text{ г}/\text{см}^3$ в интервале давлений 1–3 Мбар достаточно далека от идеальности.

В отличие от результатов эксперимента для адиабаты с $\rho_0(N_2) \approx 0.8 \text{ г}/\text{см}^3$, результаты эксперимента для адиабат с $\rho_0(N_2) \approx 0.65, 0.51 \text{ г}/\text{см}^3$ не столь однозначны. Эти результаты приведены ниже на рис. 6 с теми же обозначениями, что и на рис. 5.

Из приведенного на рис. 6 сравнения следует, что результаты настоящего эксперимента с ударным

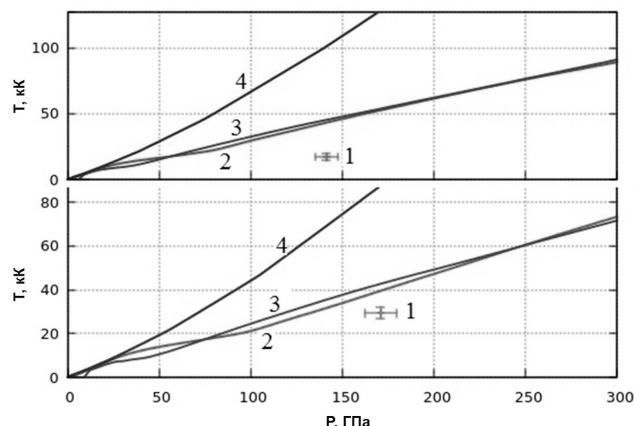


Рис. 6. Зависимости температуры ударно-сжатого азота с начальной плотностью $\rho_0(\text{N}_2) \approx 0.51 \text{ г}/\text{см}^3$ (вверху) и $\rho_0(\text{N}_2) \approx 0.65 \text{ г}/\text{см}^3$ (внизу) от давления: 1 — настоящий эксперимент (ударное сжатие азотного флюида). Расчет: 2 — УРС SAHA-N [11] с учетом молекул N_3 ; 3 — расчеты *ab initio* (FPEOS [24]); 4 — интерполяционное УРС SESAME [27]

сжатием азотного флюида с пониженной начальной плотностью лучше соответствуют расчетам с УРС SAHA и УРС FPEOS, чем с УРС SESAME, но вместе с тем расхождение теории и эксперимента для ударных адиабат с пониженной начальной плотностью достаточно велико и выходит за рамки экспериментальной погрешности.

6. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Проведены новые эксперименты с интенсивным ударным сжатием предварительно сжатого азотного флюида до состояний мегабарного диапазона давлений. Результаты настоящих экспериментов подтверждают два главных результата экспериментов, выполненных ранее также во ВНИИЭФ, с ударным сжатием жидкого азота: 1) резкий излом хода ударной адиабаты при давлении $P \approx 1 \text{ Мбар}$ и последующая изохоричность участка ударной адиабаты в диапазоне $P \approx 1\text{--}3.5 \text{ Мбар}$ со степенью сжатия ρ/ρ_0 , близкой к идеально-газовой; 2) квазилинейность хода зависимости температуры от давления в этом же интервале давлений. Есть основания предполагать, что такое поведение связано с завершением перехода азота из состояния плотного молекулярного флюида в состояние частично полимеризованной и частично ионизованной плотной неидеальной плазмы азота, сопровождающегося пересечением ATR-зоны.

В рамках расширения экспериментально исследованного диапазона параметров также проведены эксперименты с ударным сжатием азотного флюида с пониженными начальными плотностями. Срав-

нение полученных экспериментальных данных с результатами теоретических расчетов не позволяет в настоящий момент по этим последним экспериментам сделать однозначный вывод, что говорит о целесообразности и желательности дальнейшего продолжения опытов с расширением исследованного диапазона параметров.

Финансирование. Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства науки и высшего образования РФ в рамках соглашения с ОИВТ РАН № 075-15-2020-785.

ЛИТЕРАТУРА

1. В. Е. Фортов, УФН **179**, 653 (2009).
2. R. J. Barlet, Chemistry & Industry **4**, 140 (2000).
3. И. С. Любутин, А. Г. Гаврилюк, Отчет №02.516.11, Институт кристаллографии РАН, Москва (2007).
4. В. Н. Зубарев, Г. С. Телегин, ДАН СССР **142**, 309 (1962).
5. И. М. Воскобойников, М. Ф. Гогуля, А. Ю. Долгобородов, ДАН СССР **246**, 579 (1979).
6. W. J. Nellis and A. C. Mitchell, J. Chem. Phys. **73**, 6137 (1980).
7. H. B. Radousky, W. J. Nellis, M. Ross et al., Phys. Rev. Lett. **57**, 2419 (1986).
8. H. B. Radousky and M. Ross, High Pres. Res. **1**, 39 (1988).
9. W. J. Nellis, H. B. Radousky, D. C. Hamilton et al., J. Chem. Phys. **94**, 2244 (1991).
10. Р. Ф. Трунин, Г. В. Борисков, А. И. Быков и др., Письма в ЖЭТФ **88**, 220 (2008).
11. М. А. Мочалов, М. В. Жерноклетов, Р. И. Илькаев и др., ЖЭТФ **137**, 77 (2010).
12. M. Ross and F. Rogers, Phys. Rev. B **74**, 024103 (2006).
13. Е. С. Якуб, ЖФХ **67**, 305 (1993).
14. А. Б. Медведев, Р. Ф. Трунин, УФН **182**, 829 (2012).
15. В. В. Бражкин, УФН **182**, 847 (2012).
16. А. Б. Медведев, ФГВ №2, 98 (2018).
17. I. L. Iosilevskiy, in *Physics of Extreme States of Matter*, ed. by V. Fortov et al., Chernogolovka: IPCP RAS, Russia (2013), p. 136, arXiv:1403.8053v3.

- 18.** I. L. Iosilevskiy, J. Phys.: Conf. Ser. **653**, 012077 (2015).
- 19.** E. С. Якуб, ФНТ **20**, 622 (1994).
- 20.** Л. Н. Якуб, ФНТ **19**, 531 (1993).
- 21.** E. S. Yakub and L. N. Yakub, Fluid Phase Equilibria **351**, 43 (2013).
- 22.** E. S. Yakub, J. Low Temp. Phys. **41**, 449 (2015).
- 23.** B. Boates and S. A. Bonev, Phys. Rev. Lett. **102**, 015701 (2009).
- 24.** K. P. Driver and B. Militzer, Phys. Rev. B **93**, 064101 (2016).
- 25.** B. Militzer, F. González-Cataldo, Z. Shuai et al., Phys. Rev. E **103**, 013203 (2021).
- 26.** С. К. Гришечкин, С. К. Груздев, В. К. Грязнов и др., Письма ЖЭТФ **80**, 452 (2004).
- 27.** Equation of State for Nitrogen (SESAME Tables).
- 28.** М. А. Мочалов, Р. И. Илькаев, В. Е. Фортов и др., ЖЭТФ **159**, 1118 (2021).
- 29.** М. А. Мочалов, Р. И. Илькаев, В. Е. Фортов и др., ЖЭТФ **160**, 735 (2021).
- 30.** В. К. Грязнов, И. Л. Иосилевский, В. Е. Фортов, в Энциклопедия низкотемпературной плазмы, под общей ред. В. Е. Фортова. Том приложений III-1, под ред. А. Н. Старостина, И. Л. Иосилевского, Физматлит, Москва (2004), с. 111.
- 31.** В. К. Грязнов, И. Л. Иосилевский, В. Е. Фортов, в сб. Ударные волны и экстремальные состояния вещества, под ред. В. Е. Фортова, Л. В. Альтшулер, Р. Ф. Трунина, А. И. Фунтикова, Наука, Москва (2000), с. 299.
- 32.** V. K. Gryaznov, I. L. Iosilevskiy, and V. E. Fortov, Plasma Phys. Control. Fusion **58**, 014012 (2015).
- 33.** И. Л. Иосилевский, в Энциклопедия низкотемпературной плазмы, под общей ред. В. Е. Фортова, Том приложений III-1 под ред. А. Н. Старостина, И. Л. Иосилевского, Физматлит, Москва (2004), с. 349.
- 34.** V. K. Gryaznov and I. L. Iosilevskiy, Contrib. Plasma Phys. **56**, 352 (2016).
- 35.** D. Young, UCRL-52352, LLNL, Univ. California (1977).
- 36.** E. С. Якуб, ТВТ **28**, 664 (1990).
- 37.** Е. С. Якуб, ЖФХ **67**, 305 (1993).
- 38.** E. S. Yakub, Physica B **265**, 31 (1999).
- 39.** Термодинамические свойства индивидуальных веществ., т. 1, под ред. В. П. Глушко и др., Наука, Москва (1978).
- 40.** И. Л. Иосилевский, В. К. Грязнов, В. Е. Фортов, в Тезисы докладов Междунар. конф. Экстремальные состояния вещества. Детонация. Ударные волны (XV Харитоновские научные чтения), Саров (2011), с. 99.
- 41.** И. Л. Иосилевский, В. К. Грязнов, В. Е. Фортов, в Тезисы докладов Междунар. конф. Экстремальные состояния вещества. (Забабахинские научные чтения), ВНИИТФ, Снежинск, Россия (2012), с. 120.
- 42.** И. Л. Иосилевский, В. К. Грязнов, В. Е. Фортов, в Тезисы докладов Междунар. конф. Экстремальные состояния вещества. Детонация. Ударные волны (XXI Харитоновские тематические научные чтения), Саров (2019), с. 5.