

РФЯЦ-ВНИИТФ, г. Снежинск

29 мая – 2 июня 2023 г.



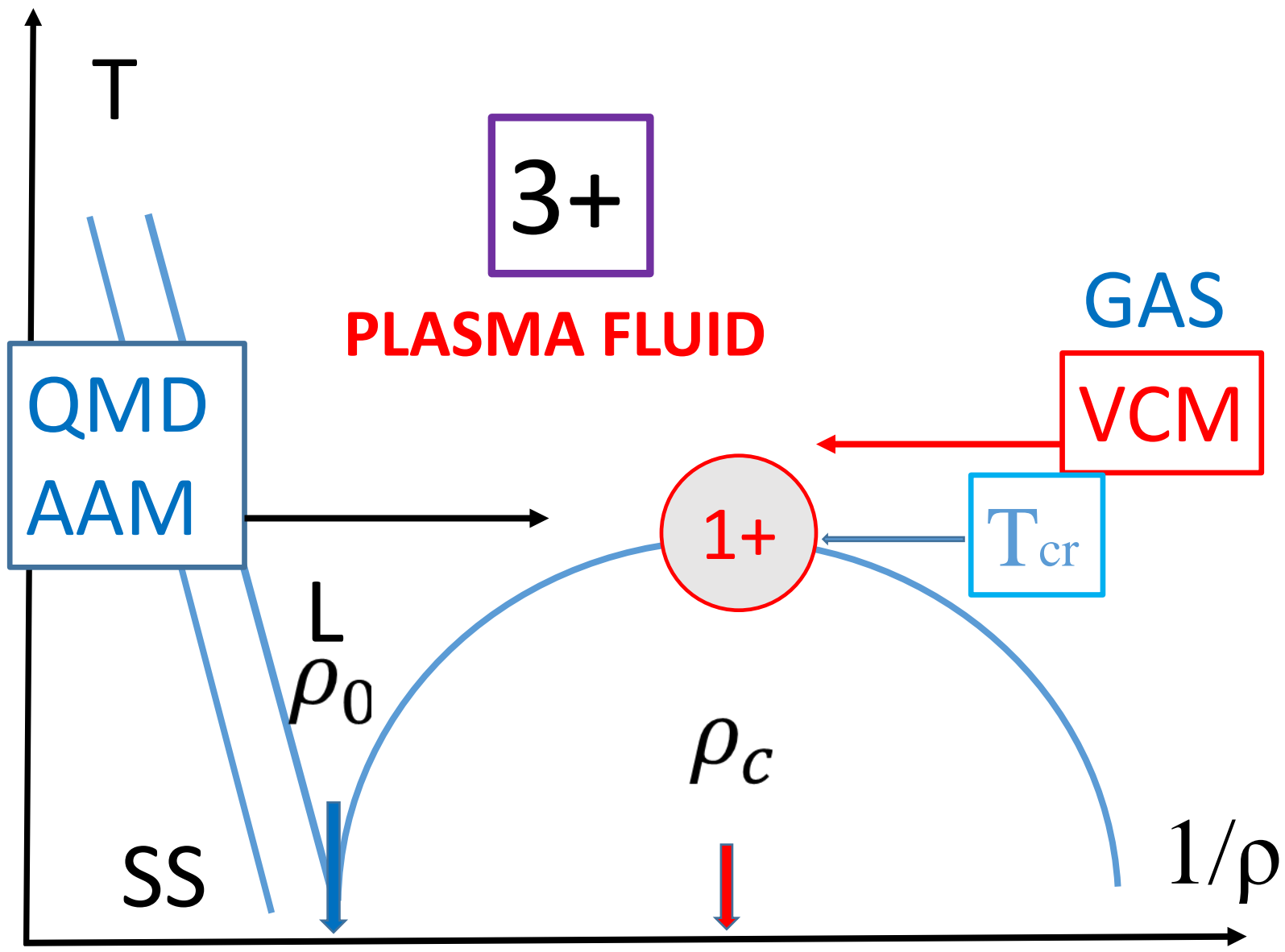
Забабихинские Научные Чтения 2023

EQUATION OF STATE AND TRANSPORT PROPERTIES OF REFRACTORY METALS IN THE SUPERCRITICAL FLUID STATE

Shumikhin A.S.

Joint Institute for High Temperatures of RAS, Russia, Moscow

Motivation



EXPERIMENT

The static experiment – alkali metals and mercury ($T_m \sim 300$ K, $T_{cr} \sim 2000$ K)

The low-melting metals $\rightarrow T_m \sim 600$ K, $T_{cr} \sim 5000 \div 10000$ K

Pulse-heating \rightarrow Pottlacher (Pb)

Shock-compression \rightarrow Nikolaev et al (Pb)

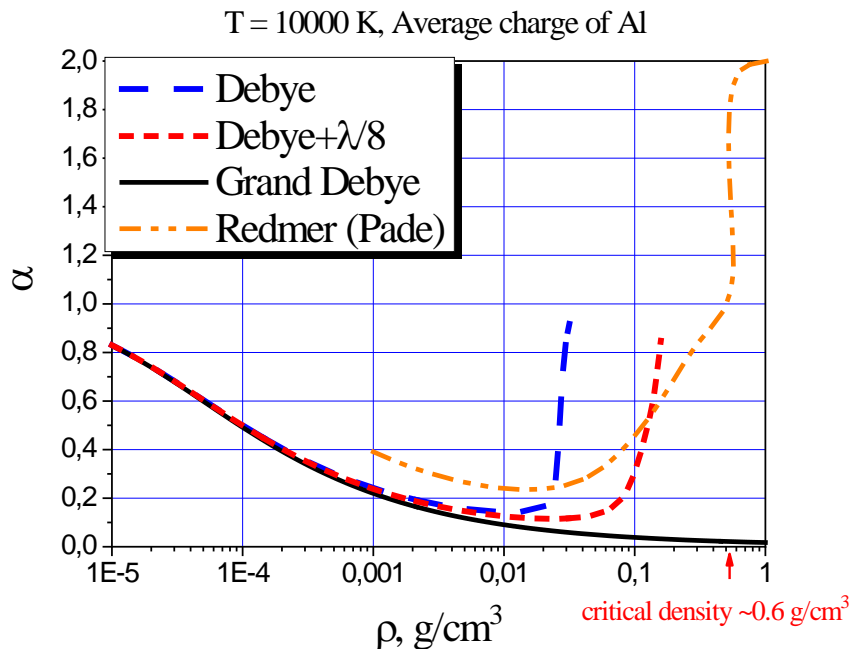
The refractory metals $\rightarrow T_m \sim 3000$ K, $T_{cr} > 10000$ K

Pulse-heating \rightarrow Pottlacher (Co, Mo, Nb, Ta, Re), Seydel (Mo, Ta, W etc.), DeSilva (Ta, W)

Shock-compression \rightarrow Nikolaev et al (Mo)

THEORETICAL

1. Kuhlbrodt S., Holst B., Redmer R. Contrib. Plasma Phys. **45**, 73 (2005)
2. Fu Z. et al. Phys. Scr. **85**, 045502 (2012); High Energy Density Phys. **9**, 781 (2013) – Fe, Ni, W
3. Apfelbaum E.M., Vorob'ev V.S. J Phys Chem B **120**, 4828 (2016)
4. Apfelbaum E.M. Contrib. Plasma Phys. **57**, 479 (2017); Phys. Plasma **24**, 052702 (2017) – Ta, Mo



A.L. Khomkin and A.S. Shumikhin,
High Temp. **50**, 307 (2012)

MODELLING

1. Levashov P.R. et al. Phys. Rev. B **97**, 024205 (2018); Phys. Rev. B **103**, 184204 (2021) – W, Mo
2. Miljacic L. et al. CALPHAD **51**, 133 (2015) – Ta
3. French M. Phys. Rev. B **90**, 165113 (2014) – Mo
4. Elkin V.M. et al. J. Phys.: Condens. Matter **32**, 435403 (2020) – Pt
5. Fu Z. et al. Phys. Plasmas **24**, 013303 (2017) – Al

NEW CHEMICAL MODEL OF DENSE PLASMA

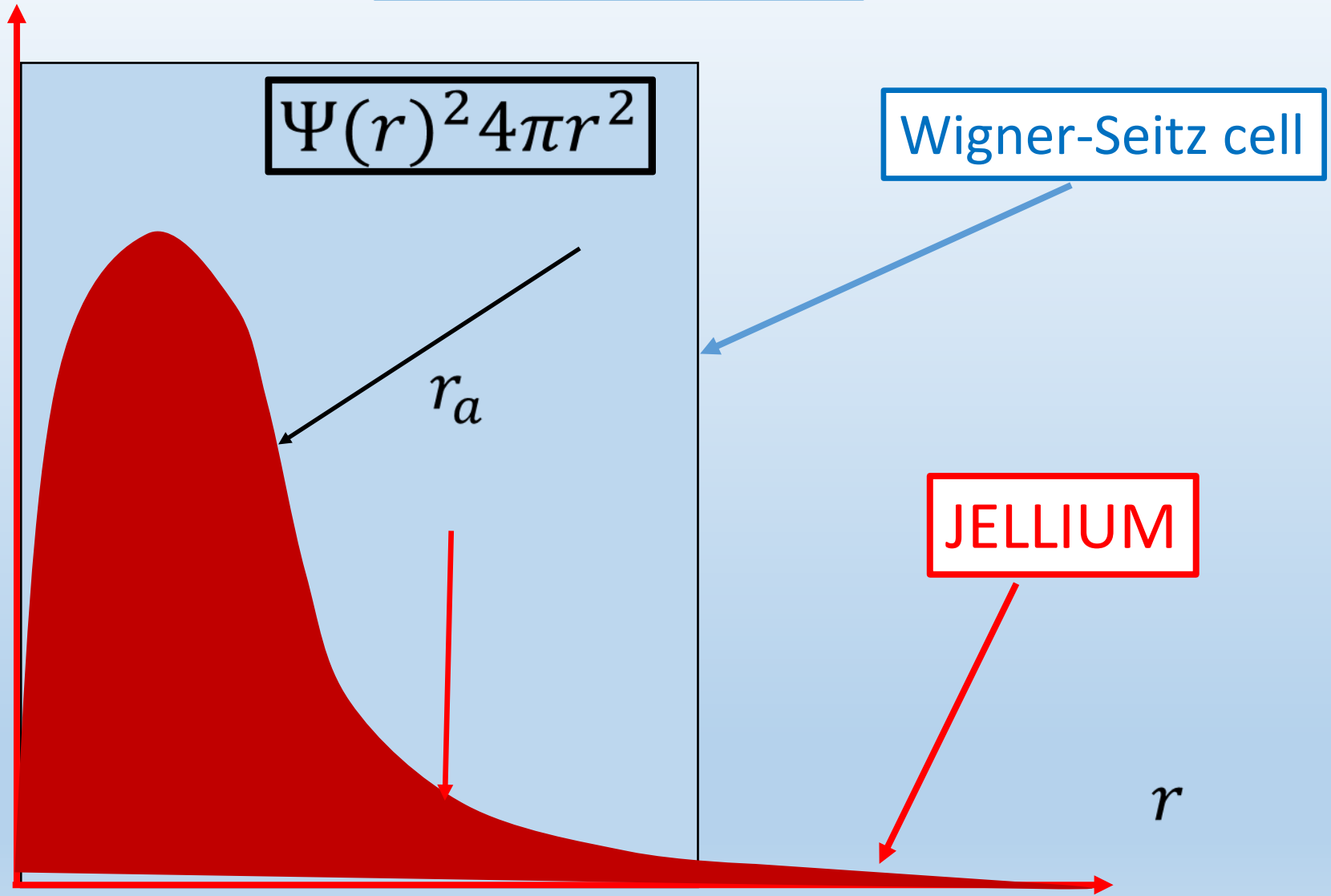
ATOMS + JELLIUM

ELECTRONS

IONS

3+

New hypothesis



Atom immersed in the electron jellium at any density!!!

Electron jellium

Isolated atom occupies the entire space

The atom surrounded by its kind only a restricted volume defined by the size of the Wigner-Seitz cell
«Excessive» electron density formed jellium

The electron jellium exist at any density!

An atom always immersed in jellium!

Jellium – new electron component

Jellium density does not depend on temperature.

Degree of “Cold Ionization” – HFS approximation

$$n_e = \alpha_{HF} n_0$$

$$\alpha_{HF} = \sum_i \alpha_{HF}^i$$

$$\alpha_{HF}^i = \int_{y_a}^{\infty} |\Psi_i(\mathbf{r})|^2 r^2 dr + \frac{y_a^3}{3} \Psi_i(y_a)^2$$

$$\Psi(\mathbf{r}) = \sum_{\lambda,p} C_{\lambda,p} \chi_{\lambda,p}(r, \theta, \varphi).$$

$$\chi_{\lambda p}(r, \theta, \varphi) = R_{\lambda p}(r) Y_{\lambda p}(\theta, \varphi),$$

где

$$R_{\lambda p}(r) = [(2n_{\lambda p})!]^{-1/2} (2\zeta_{\lambda p})^{n_{\lambda p}+1/2} \times \\ \times r^{n_{\lambda p}-1} e^{-\zeta_{\lambda p} r}.$$

“3+” model Helmholtz Free Energy

$$F = F_a + F_{ch}$$

$$F_a = -N_a kT \ln \left(\frac{eV g_a \Sigma_a}{N_a \lambda_a^3} \right) + N_a kT \frac{4\eta - 3\eta^2}{(1 - \eta)^2} + \frac{1}{2} N_a E_{coh}(y)$$

$$F_{ch} = -N_e kT \ln \left(\frac{eV g_e}{N_e \lambda_e^3} \right) - N_i kT \ln \left(\frac{eV g_i}{N_i \lambda_i^3} \right) - (N_e + N_i) \Delta f_{ei}$$

$$\beta \mu_a = -\ln \frac{V g_a}{N_a \lambda_a^3} + \frac{8\eta - 9\eta^2 + 3\eta^3}{(1 - \eta)^3} - \frac{\beta E_{coh}}{2} \left(1 - \frac{y_a}{3 E_{coh}} \frac{\partial E_{coh}}{\partial y_a} \right)$$

$$\beta \mu_{e,i} = -\ln \frac{V g_{e,i}}{N_{e,i} \lambda_{e,i}^3} - \frac{2 Ry}{y_i}$$

$$\frac{1 - \alpha}{\alpha^2} = n \lambda_e^3 \frac{g_a}{2g_i} \exp\left(\beta I - \frac{2\beta Ry}{y_i} - \frac{\beta E_{coh}}{2} \left(1 - \frac{y_a}{3 E_{coh}} \frac{\partial E_{coh}}{\partial y_a}\right)\right) - \frac{8\eta - 9\eta^2 + 3\eta^3}{(1 - \eta)^3}$$

$$N_e = N_i$$

$$N_i + N_a = N$$

$$n_e = n_i = n\alpha(n, T)$$

$$n_a = n(1 - \alpha(n, T))$$

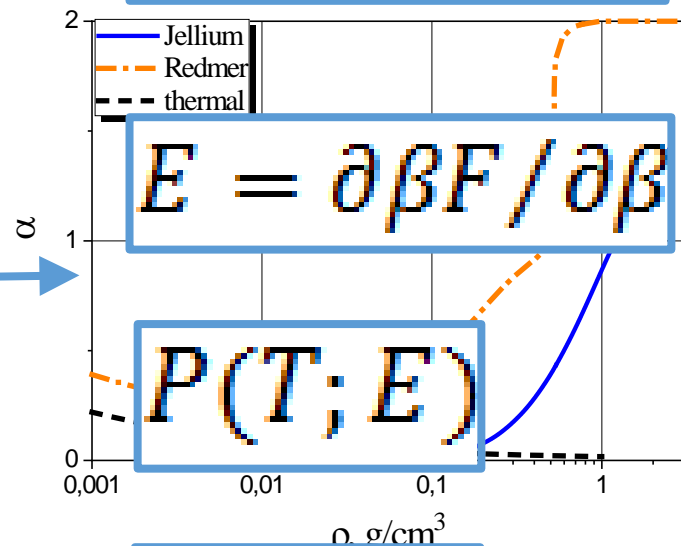
$$n_j = n_a \alpha_j(n_a)$$

$$P = -\partial F / \partial V$$

$$E = \partial \beta F / \partial \beta$$

$$P(T; E)$$

$$\sigma(n_e, n_j)$$



3+ model

$$\sigma = \sigma_t + \sigma_j$$

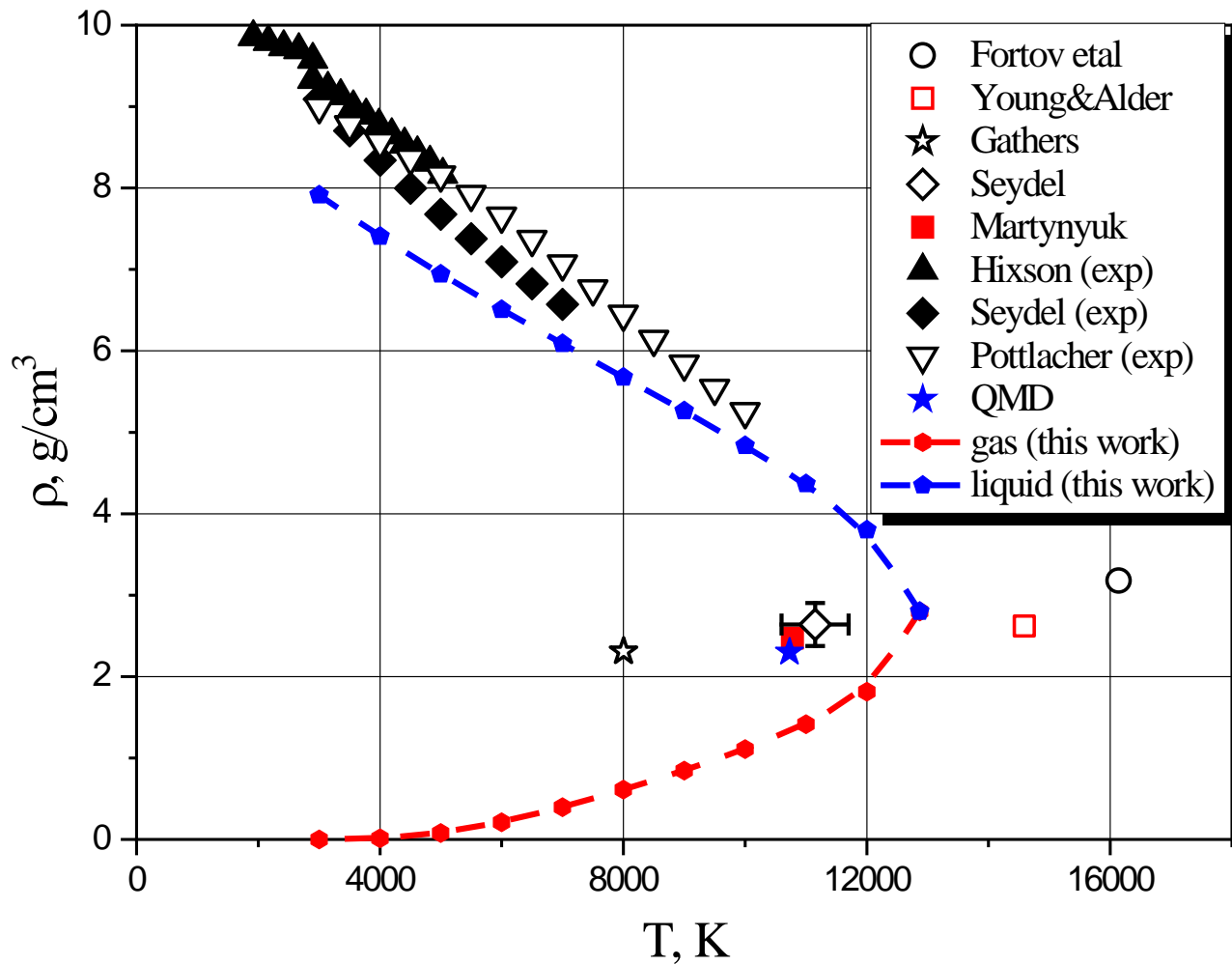
$$\sigma_t = \frac{4\alpha n e^2 \beta^{5/2}}{3\sqrt{2\pi m_e}} \frac{1}{9 \cdot 10^{11}} \times$$
$$\times \int_0^{\infty} \frac{\exp(-\beta\varepsilon) \varepsilon^{3/2} d\varepsilon}{\sqrt{\varepsilon} [(1-\alpha)nQ_{ea}(\varepsilon) + \alpha n \gamma_e^{-1} Q_{ei}(\varepsilon, \Gamma)]}.$$

$$\sigma_j = n_j \frac{e^2}{m_e} \tau.$$

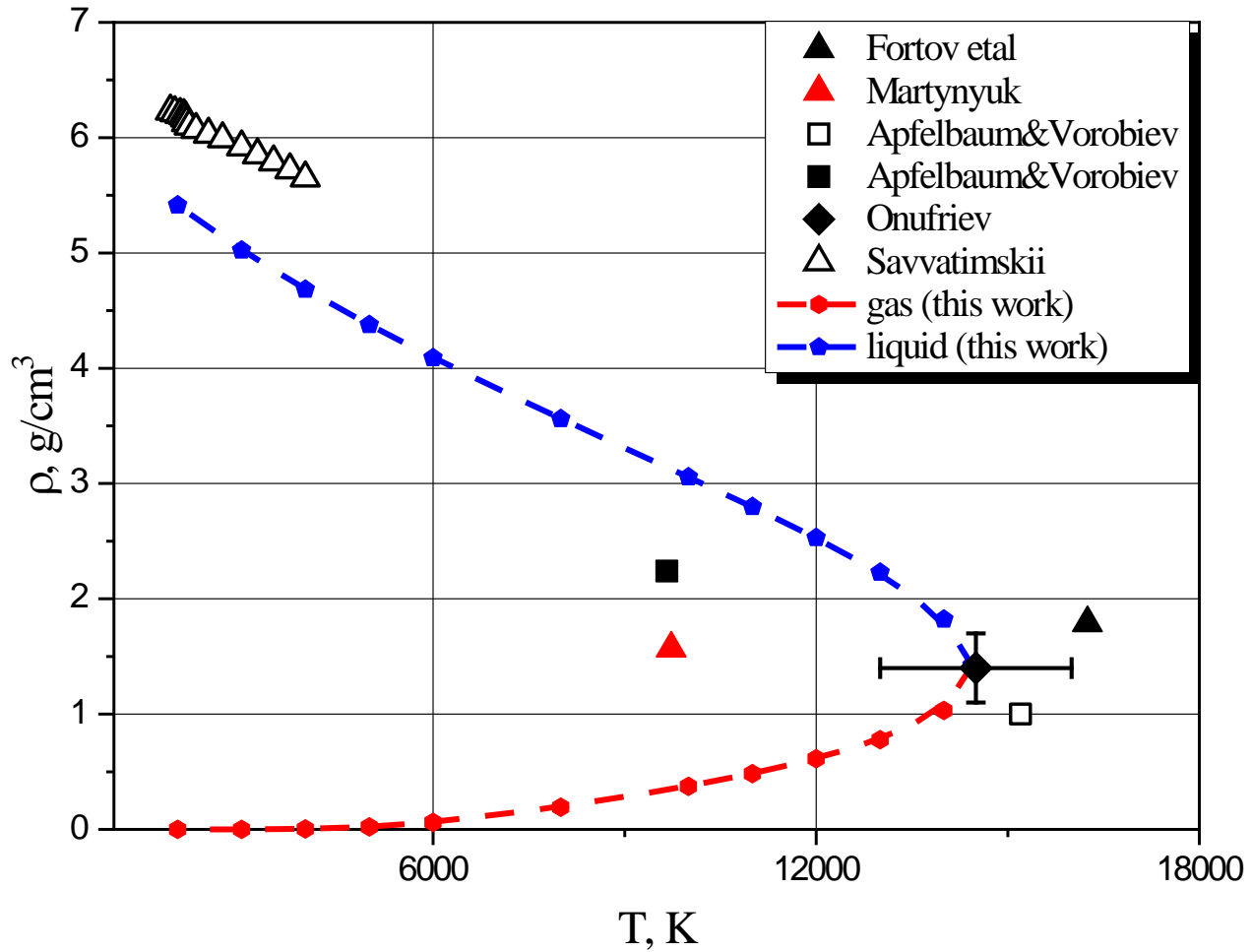
$$\frac{\tau}{m_e} = \frac{2R_a}{p_F},$$

THERMOPHYSICAL PROPERTIES

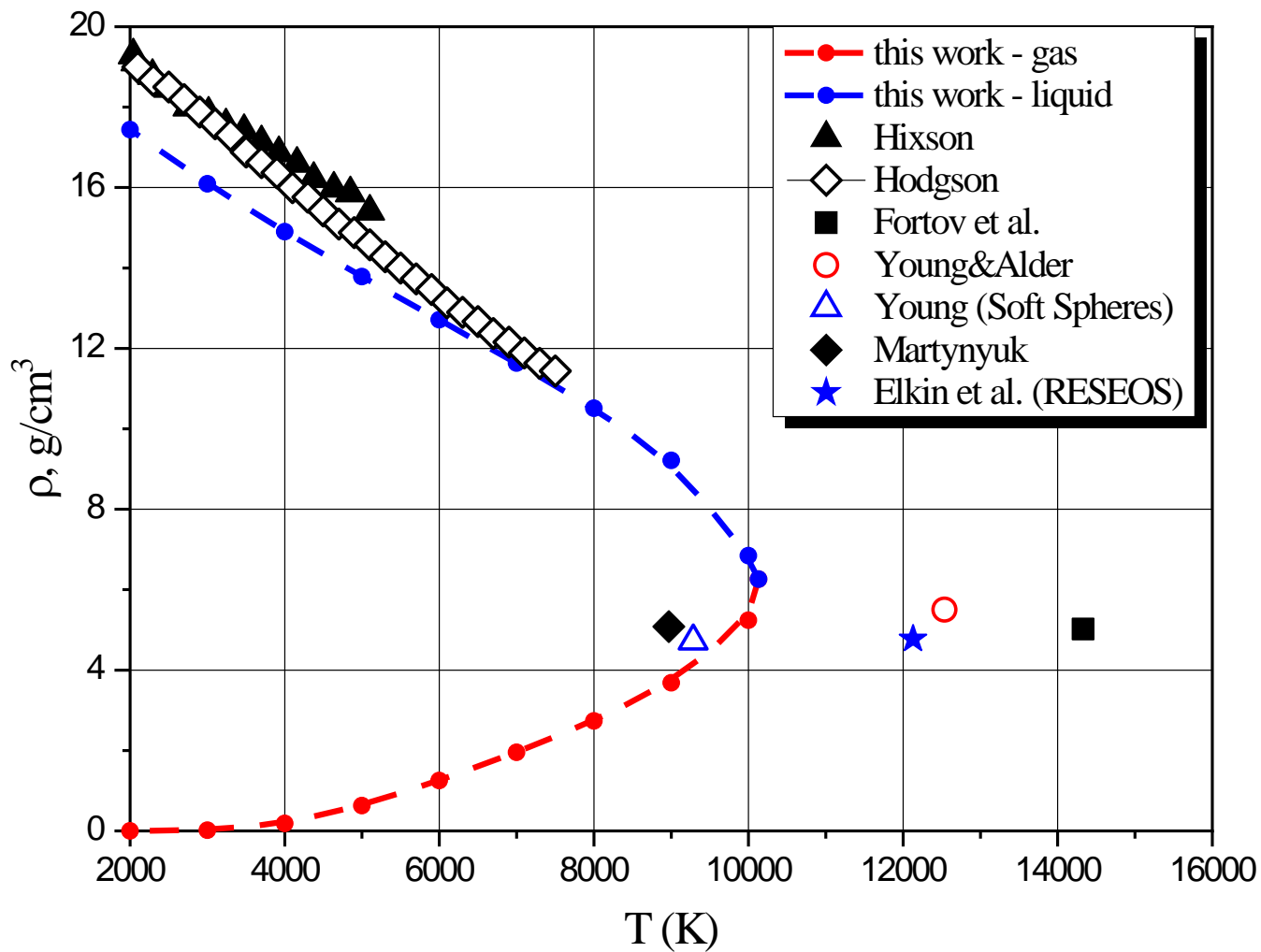
Binodal of molybdenum



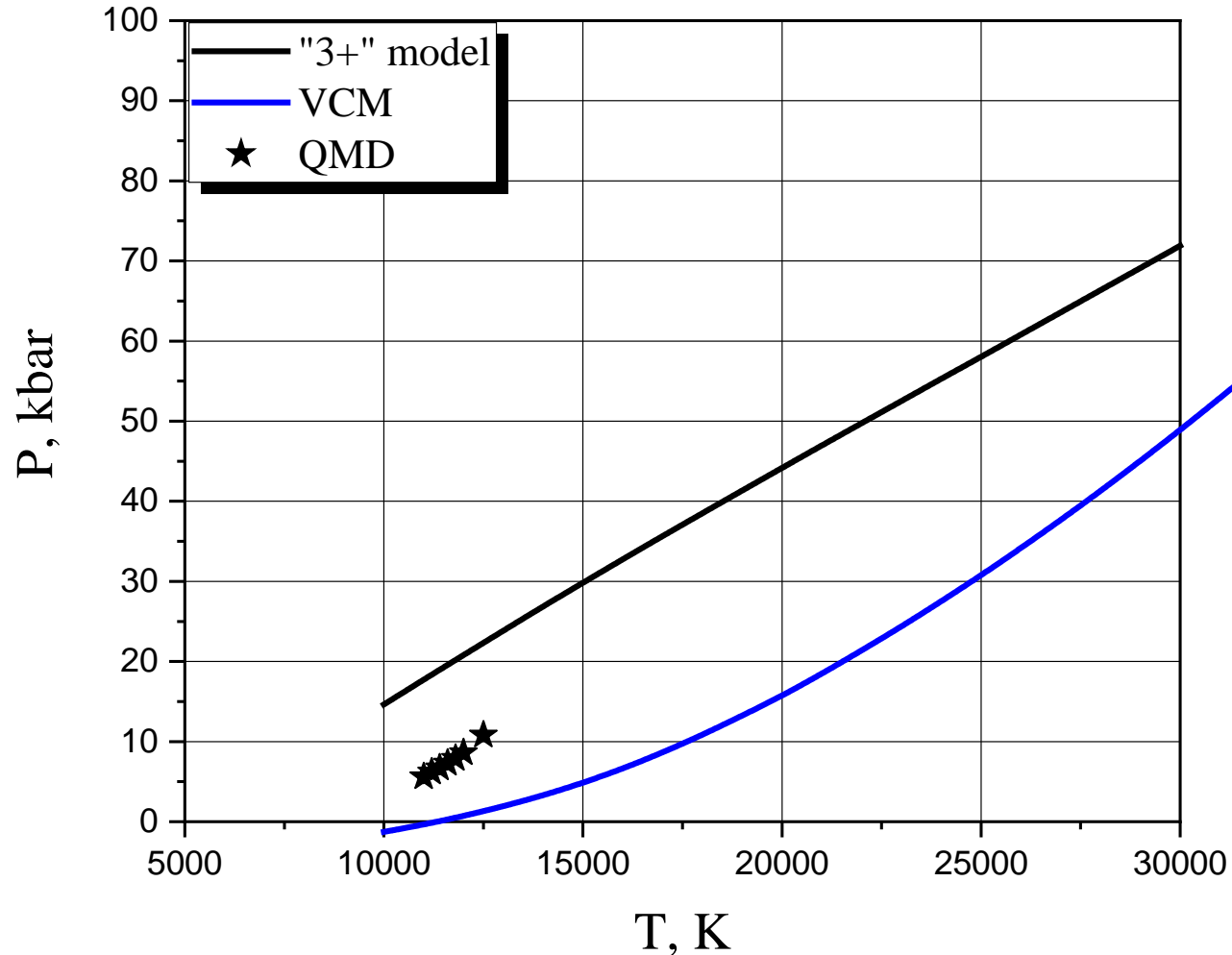
Binodal of Zirconium



Binodal of platinum

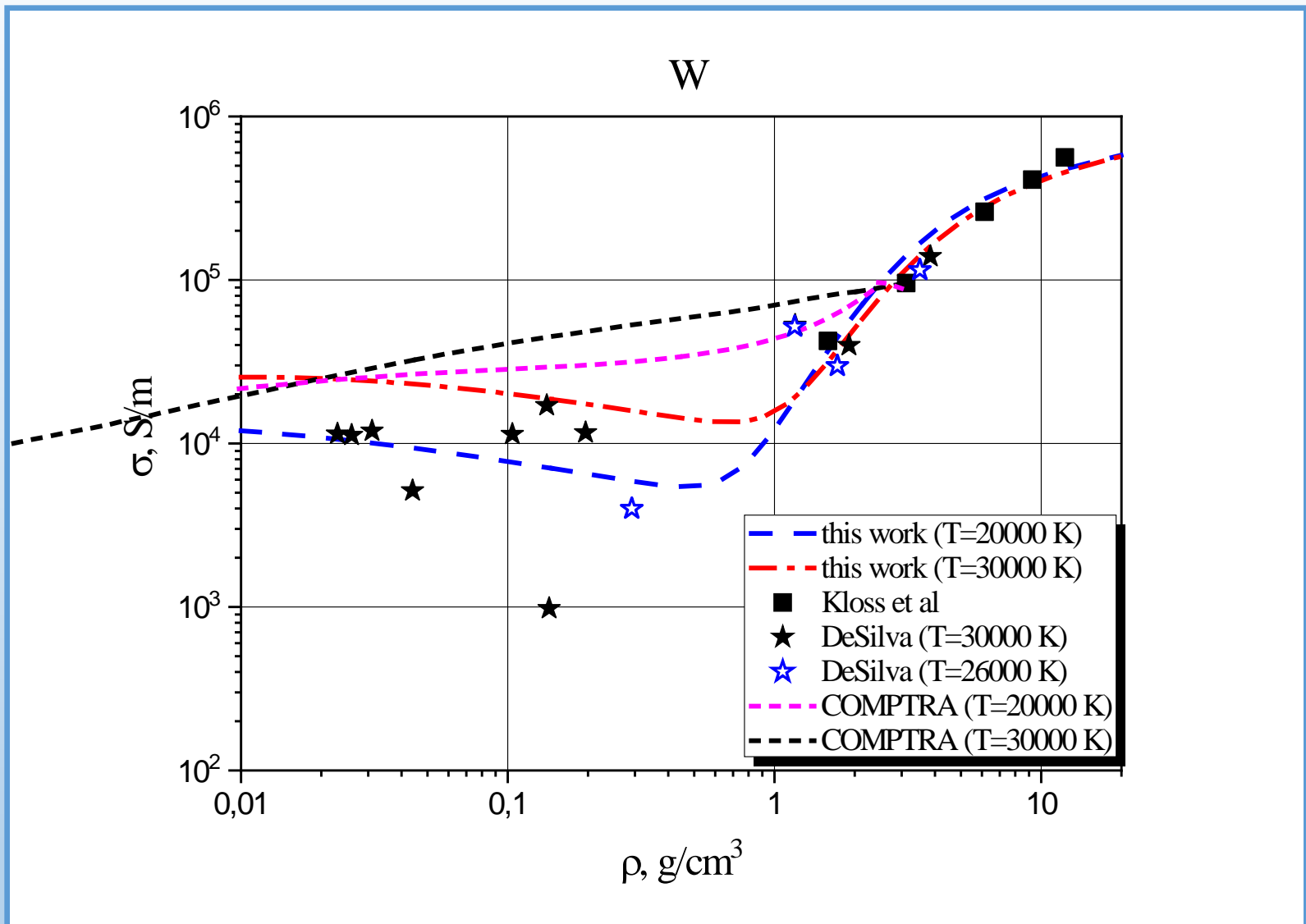


Mo, $\rho = 2 \text{ g/cm}^3$



QMD – Minakov D.V., Paramonov M.A., Levashov P.R. Phys. Rev. B **103**, 184204 (2021)
VCM – Khomkin A.L., Shumikhin A.S. High Temp. **52**:3, 328 (2014)

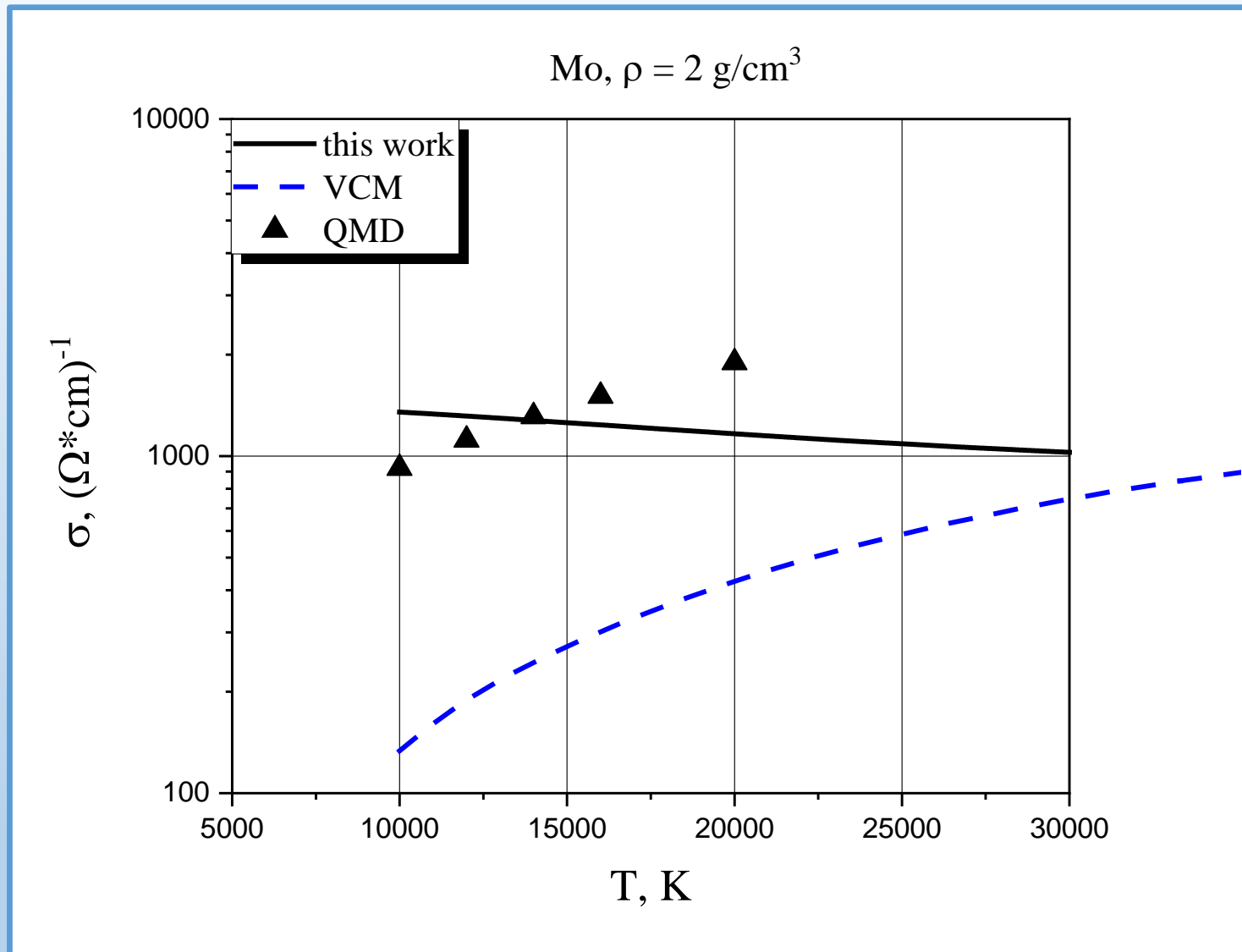
TRANSPORT PROPERTIES



COMPTRA – S. Kuhlbrodt, B. Holst and R. Redmer, *Contrib. Plasma Phys.* **45**, 73 (2005)

Experiment – A.W. DeSilva and A.D. Rakhel, *Contrib. Plasma Phys.* **45**, 236 (2005)

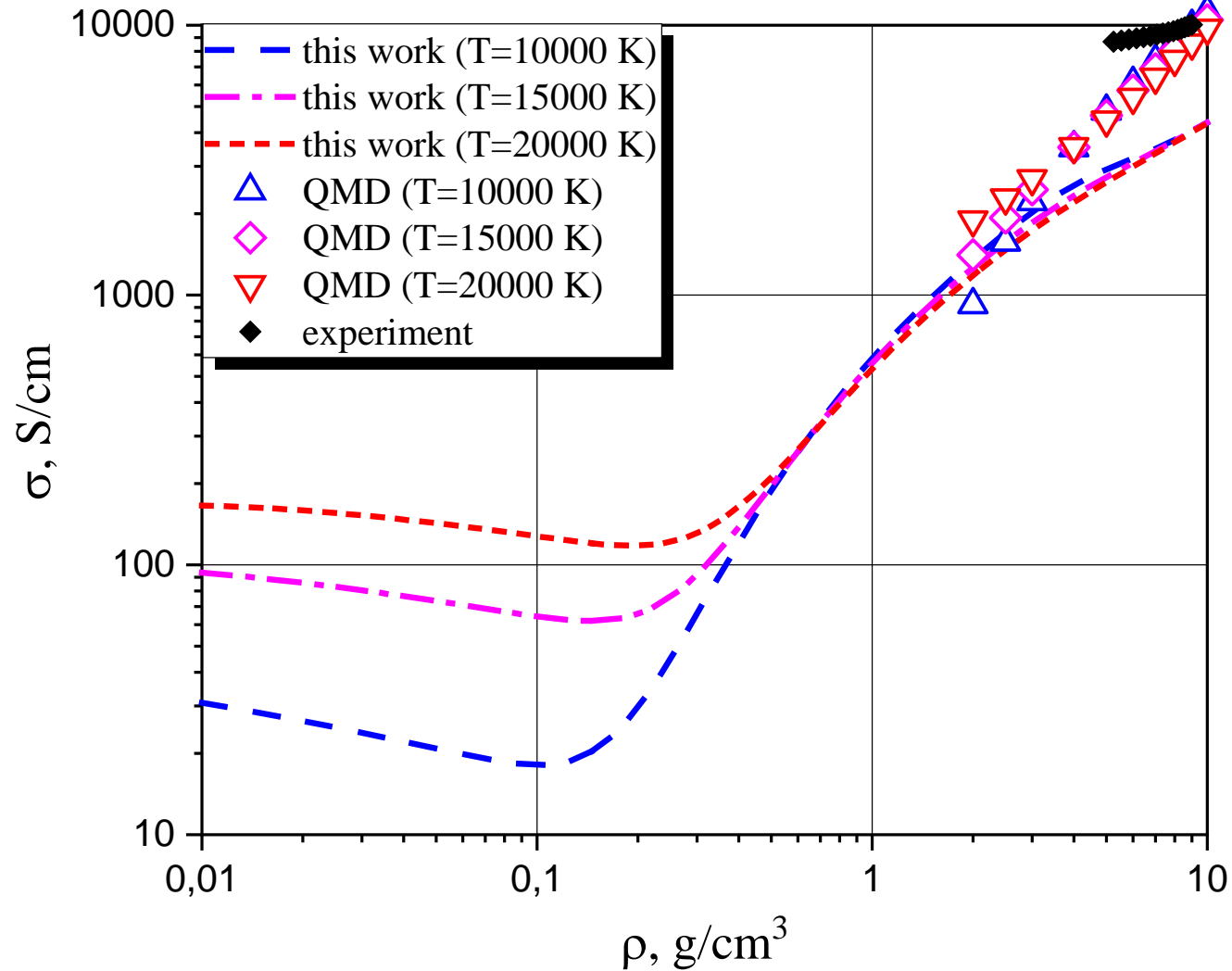
A. Kloss, T. Motzke, R. Grossjohann, H. Hess, *Phys. Rev. E* **54**, 5851 (1996).



QMD – French M., Mattsson T.R. Phys. Rev. B **90**, 165113 (2014)

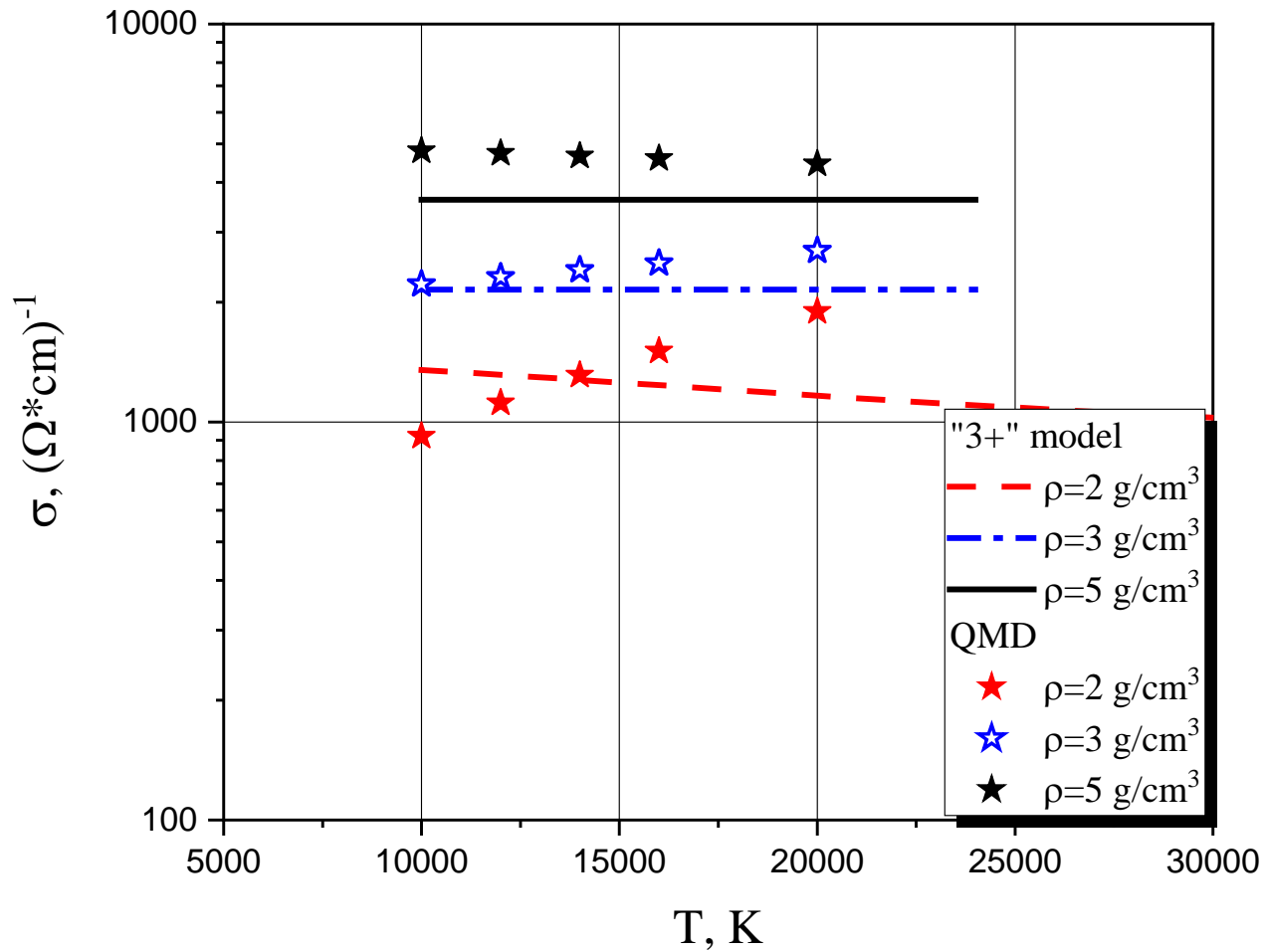
VCM – Khomkin A.L., Shumikhin A.S. High Temp. **52**:3, 328 (2014)

Mo



QMD – French M., Mattsson T.R. Phys. Rev. B **90**, 165113 (2014)

Experiment – Pottlacher G. et al. J. Phys.: Condens. Matter **3**, 5783 (1991)



ВЫВОДЫ

1. Предложенная “3+” модель позволяет в рамках единого подхода рассчитать состав, уравнение состояния и электропроводность для сверхкритического флюида металлов, включая тугоплавкие. Отличительной особенностью модели является использование твердотельных характеристик для описания свойств СКФ: когезионная энергия связи атомов и электронное желе – зачаток зоны проводимости.
2. При сжатии происходит изменение физической природы ионизации:
 - от термической к холодной;
 - от термических электронов к электронам желе.
3. Предложенная “3+” модель уравнения состояния может служить исходными данными для более точных расчётов в рамках численных методов.

***THANK YOU
FOR YOUR ATTENTION!***

1. Хомкин А.Л., Шумихин А.С. Критические точки паров металлов // ЖЭТФ 2015. Т. 148. с. 597.
2. Хомкин А.Л., Шумихин А.С. Проводимость паров металлов в критической точке // ЖЭТФ 2016. Т. 150. с. 1020.
3. Хомкин А.Л., Шумихин А.С. Переход от газокинетической к минимальной металлической проводимости в сверхкритическом флюиде паров металлов // ЖЭТФ 2017. Т. 151. с. 1169.
4. Хомкин А.Л., Шумихин А.С. Особенности расчёта уравнения состояния, состава и проводимости плотных, закритических паров металлов – плазменного флюида // ЖЭТФ 2017. Т. 152. с. 1393.
5. Хомкин А.Л., Шумихин А.С. Газообразный металл и проблема перехода пар-жидкость (диэлектрик-металл) в парах металлов // ЖЭТФ 2020. Т. 157. с. 717.
6. Хомкин А.Л., Шумихин А.С. Сверхкритический флюид плазмы паров металлов, инертных газов и экситонов // УФН 2021. Т. 191, № 11. с. 1187.
7. Khomkin A.L., Shumikhin A.S. Is the atomic metal vapor a dielectric state? // Phys. Scr. 2021. Vol. 96. 035806.