

Synthesen bei hohen Drücken und hohen Temperaturen

Vicente Pacheco, Katrin Meier und Ulrich Schwarz

Zusätzlich zu Variationen der Parameter Temperatur und chemische Zusammensetzung erfordert die Darstellung neuer oder neuartiger Verbindungen in einigen Fällen auch die Untersuchung der Zustandsvariablen Druck. Hochdruck-Hochtemperatur-Synthesen können zunächst im Mikromaßstab in heizbaren Diamantstempel-Druckzangen durchgeführt werden. Bei diesen Experimenten wird die Probe (etwa $0,1 \text{ mm} \times 0,1 \text{ mm} \times 0,1 \text{ mm}$) in einer metallischen Dichtung aus Stahl oder Wolfram eingeschlossen. Der Druckaufbau wird durch plastische Verformung zwischen parallel orientierten Stempeln aus Diamant erreicht. Zur Realisierung hydrostatischer Druckbedingungen wird ein in der Regel flüssiges Druckmedium, meist Alkohol oder Paraffin, zugefügt. Bei der verwendeten Druckzange können hohe Temperaturen durch Einbau von acht Heizelementen in speziell vorgesehene Aussparungen erzeugt werden. Die Charakterisierung von Ausgangsmaterial und Produkt geschieht in der Regel durch Röntgenbeugungsuntersuchungen. Mit der beschriebenen Anordnung sind bisher Synthesen bei Drücken bis 15 GPa und Temperaturen bis zu 800 K unternommen worden.

Zur Herstellung größerer Probenmengen (typisch $3 \text{ mm} \times 3 \text{ mm} \times 3 \text{ mm}$) wird eine hydraulische 1000 t Prozesspresse mit servogesteuerter Drucktechnologie verwendet, die eine hochpräzise Einstellung vorgewählter Kräfte ermöglicht. Aufgrund des Gesamtgewichtes von etwa neun Tonnen wurde als Standort ein Laboratorium im Untergeschoss gewählt, sodass der gesamte Aufbau über eine lastverteilende Vorlegeplatte von vier Quadratmetern direkt auf dem Fundament aufliegt. Die Regelung der krafterzeugenden Hydraulik erfolgt über eine elektronische Steuerung. Dabei wird die anzusteuernde Kraft entweder manuell ausgewählt oder eine komplexere Druck-Zeit-Abfolge von einem PC übermittelt. Davon unabhängig wird von einer zweiten Regeleinheit die gewünschte Heizleistung gemäß dem gewählten Temperaturprogramm und einer Kalibrationskurve eingestellt oder über ein Thermoelement geregelt. Die Umwandlung der von der Presse erzeugten Kraft in Druck findet in

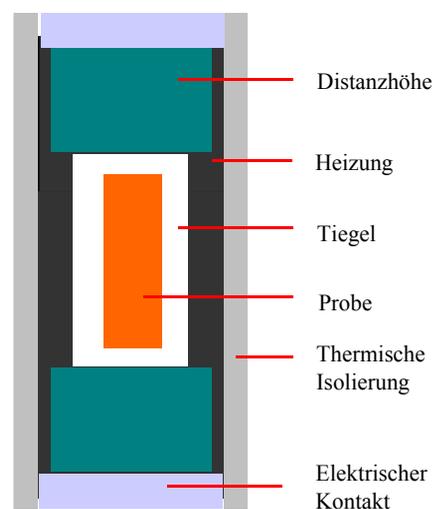


Abb. 1: Querschnittszeichnung des zentralen Zylinders bestehend aus thermischer Isolation zur Reduktion des Wärmeübertrags auf die Stempel, Widerstands-Heizung, Abstandshaltern, elektrischen Kontakten und zentralem Tiegel als Probenbehälter.

Fig. 1: Cross-section of the central cylinder consisting of a thermal insulation for reducing the heat transfer to the anvils, resistivity heating, distance units, electrical connectors and central crucible as sample container.

einem speziellen Druckwerkzeug, dem sogenannten Walker-Modul, statt. Die Ausgangssubstanzen werden in einen Tiegel gefüllt und in einer zylindrischen Hülse eingebettet, die als Widerstandsheizung dient (Abb. 1). Der Aufbau wird mit Deckeln versehen und in eine zweite Hülse zur thermischen Isolation eingebracht. Nach elektrischer Kontaktierung der Heizung mit Metallscheiben wird der gesamte Zylinder im ausgebohrten Loch eines Oktaeders platziert. Dieses Polyeder wird in speziellen Aussparungen im Zentrum eines Würfels aus acht kleineren Hartmetallwürfeln befestigt (Abb. 2). Die Kraftübertragung von der Presse auf die Würfel vollzieht sich über eine spezielle Anordnung geeigneter angepasster Stahlkeile, die eine gleichmäßige Krafteinwirkung an der Probe bewirken. Der mit diesem Aufbau zugängliche Arbeitsbereich umfasst zurzeit Drücke bis etwa 15 GPa und Temperaturen bis circa 1800 K.

Syntheses at High Pressures and High Temperatures

Vicente Pacheco, Katrin Meier and Ulrich Schwarz

The preparation of new or novel compounds requires besides variations of the parameters temperature and chemical composition in some cases the application of the state variable pressure.

These high-pressure high-temperature syntheses can be accomplished on a microscopic scale in heatable diamond anvil cells. In these experiments the sample (about $0.1 \text{ mm} \times 0.1 \text{ mm} \times 0.1 \text{ mm}$) is enclosed in a metallic gasket. The pressure is generated by plastic deformation inside parallel oriented diamond anvils. In order to realize hydrostatic pressure conditions a usually liquid pressure medium is added. In the high pressure cell used, high sample temperatures are generated by insertion of eight heating elements into specially designed clearances. Characterization of starting material and product are usually performed by X-ray diffraction experiments. With the described setup syntheses at pressure as high as 15 GPa and temperatures up to 800 K have been carried out.

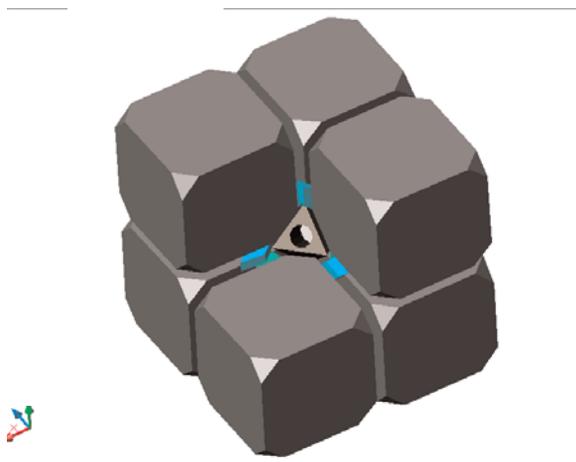


Fig. 2: Cubic setup of pressure-anvils machined from sintered carbide with central octahedron.

Abb. 2: Würfelförmiger Aufbau der Druckstempel aus gesintertem Hartmetall mit Oktaeder im Zentrum.

In order to produce larger amounts of samples (typically $3 \text{ mm} \times 3 \text{ mm} \times 3 \text{ mm}$) a hydraulic 1000 t process press with servo-controlled pressure technology is employed. It allows, as an advantage, the highly precise adjustment of pre-selected forces. Due to the result of the total weight of approximately nine tons, a laboratory in the basement was selected as the location so that the complete setup bears on a load distributing slab of four square meters directly on the foundation. The regulation of the power generating hydraulic takes place by an electronic control unit. Here, the desired force is either entered manually or via a complex pressure-time program being transmitted by a personal computer. Independently, a second control unit sets the desired heating power according to the selected temperature program and a calibration curve. Alternatively, it may be adjusted by means of a thermoelement. The transformation of the force generated by the compactor into pressure takes place inside a special tool, the so-called Walker module.

The starting materials are incorporated into a crucible and are positioned in a cylindrical bushing which serves as a resistivity heater (Fig. 1). The setup is provided with lids and is inserted into a second sleeve for thermal insulation. After making contact to the heater by metal plates the cylinder is placed within the drilled hole of an octahedron. This polyhedron is fixed in special clearances in the center of a cube consisting of eight smaller cubes made from carbide (Fig. 2). The force transmission from the compactor to the cubes is performed by a special arrangement of suitably adapted steel wedges which ascertain a homogeneous impact of force on the sample. The working range which is accessible with this setup covers currently pressures up to 15 GPa and temperatures up to about 1800 K.