

Forschung bei hohen Drücken

Günter Sparn, Heribert Wilhelm und Takeshi Nakanishi

In den letzten beiden Jahren verzeichneten wir an unserem Institut einen zunehmenden Bedarf an der Nutzung des Parameters Druck bei der Untersuchung der physikalischen Eigenschaften neuer Materialien. Mit Blick auf die beiden Forschungsschwerpunkte "Verständnis der chemischen Bindung" und "Stark korrelierte elektronische Systeme" hat sich die Anwendung von hydrostatischem Druck oder uniaxialer Kraft zur Variation des Volumens des Festkörpers als ein unersetzliches Werkzeug von hohem Wert entwickelt. Um der gestiegenen Nachfrage gerecht zu werden, haben wir Ende 2002 einen neuen Mischungskryostaten in Betrieb genommen. Dieser ist mit dem schon vorhandenen Kryostat kompatibel, so dass alle bisher entwickelten experimentellen Einbauten (Druckzellen) ohne Veränderung auch dort genutzt werden können. Darüber hinaus soll im Frühjahr 2003 ein Helium-Durchflusskryostat installiert werden. Dieser soll helfen, einen Engpass an Messkapazität im Temperaturbereich $3,5 \text{ K} < T < 350 \text{ K}$ zu beseitigen und so unsere Arbeiten auf dem Gebiet der Clathrate und der niederdimensionalen Spinsysteme zu beschleunigen. Aufgrund unserer Absicht, die Aktivitäten aller Forschungsbereiche zu unterstützen, haben wir große Anstrengungen unternommen und eine Vielzahl neuer Typen von Druckzellen entwickelt. Dabei ist jeder Druckzellentyp für einen speziellen Messzweck optimiert. Diese technischen Entwicklungen, deren Verwirklichung oft eine Herausforderung an Qualität und Präzision bei der Herstellung der Bauteile bedeutete, wären ohne die Unterstützung durch unsere hauseigenen Werkstätten nicht möglich gewesen. Im folgenden beschränkt sich unsere Beschreibung auf jene Einrichtungen, die nach der Fertigstellung des Berichts des Jahres 2000 hinzugekommen sind.

Von größter Bedeutung sind unsere Bemühungen, Drücke weit oberhalb von $p = 4 \text{ GPa}$ zu erzielen. Dazu haben wir eine Hochdruckzelle entwickelt, welche nach dem Bridgman-Prinzip arbeitet. Hierbei werden zwei gegeneinander gerichtete konische Druckstempel mittels einer ölhydraulischen Presse bei Zimmertemperatur belastet. Die Druckstempel sind aus nichtmagnetischem Wolfram-

Karbid ($p_{\text{max}} \cong 10 \text{ GPa}$) oder gesintertem Diamant ($p_{\text{max}} \cong 25 \text{ GPa}$) gefertigt und auf Unterstütsplatten aus Edelstahl gelagert. Die Wolfram-Karbid Druckstempel wurden schon in Magnetfeldern bis $B = 10 \text{ T}$ erfolgreich eingesetzt. Die aufgebrachte Last wird durch vier Schraubbolzen fixiert. Um die Last und damit den Druck in der Zelle auch bei Abkühlung konstant zu halten, sind die Schraubbolzen nicht aus Edelstahl, sondern aus einer Ti-Al-V Legierung gefertigt. Dadurch kompensieren sich die Effekte der temperaturbedingten Längenänderungen innerhalb dieser Klemmanordnung aufgrund der verschiedenen Ausdehnungskoeffizienten dieser Materialien bis auf wenige Prozent. Die Druckkammer wird von einer gelochten Scheibe aus Pyrophyllit gebildet. Zwei Scheiben

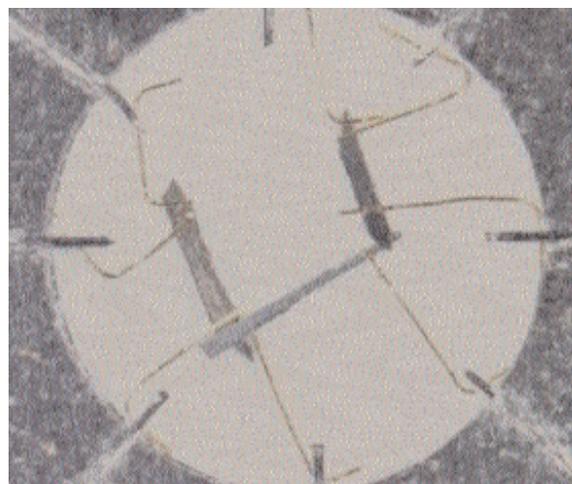


Abb. 1: Einblick in die Bridgman-Druckzelle (Pyrophyllit-Dichtring: $\varnothing_{\text{int}} = 2 \text{ mm}$). Auf dem Druckübertragungsmedium (Steatitscheibe) sind die Proben und das Manometer (Bleifolie) angeordnet. Dünne Golddrähte ($\varnothing = 25 \mu\text{m}$) stellen den Kontakt zu den elektrischen Durchführungen (Platindrähte, $\varnothing = 50 \mu\text{m}$) her. Vor dem Schließen der Druckzelle wird eine zweite Steatitscheibe oben aufgelegt.

Fig. 1: Top view of a pyrophyllite gasket ($\varnothing_{\text{int}} = 2 \text{ mm}$) with two samples and the pressure gauge (Pb-foil) placed on a disk of steatite, i.e., the pressure transmitting medium. Thin Au-wires ($\varnothing = 25 \mu\text{m}$) connected to Pt-wires ($\varnothing = 50 \mu\text{m}$) establish the electrical contact outside the pressure cell. The sample chamber will be closed with a second steatite disk placed on top of this assembly.

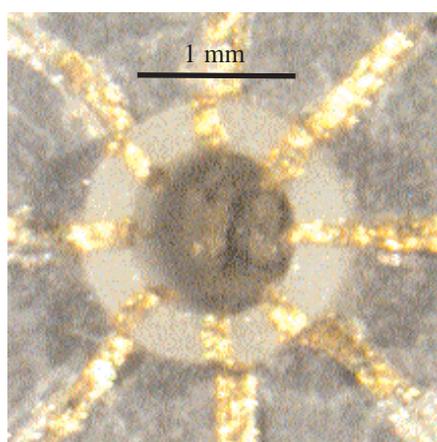
Research at High Pressures

Günter Sparn, Heribert Wilhelm and Takeshi Nakanishi

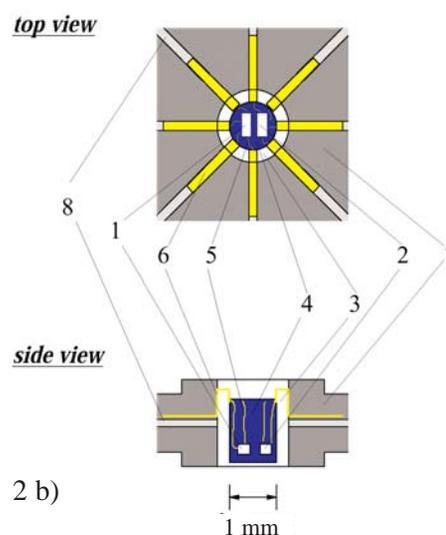
In the last two years a growing demand at our institute has emerged for utilizing the parameter pressure as a tool for the investigation of the physical properties of new materials. In light of the key research areas, understanding chemical bonding and correlated electron systems, changing volume by hydrostatic pressure or uniaxial force has become an indispensable tool of unprecedented value. To cope with this demand, one new dilution refrigerator has been put to work in the end of 2002 which allows for accommodation of all experiments operated in our first dilution refrigerator without altering the users setup. An additional liquid-He-flow cryostat will be installed in spring 2003 to allow for more experiments at $3.5 \text{ K} < T < 350 \text{ K}$, a temperature range in particular useful for our efforts on clathrates and low dimensional spin systems. Our commitment to support the research interest of all principal research fields as a whole leads to an enormous effort in building up a large variety of new pressure cells. Each of this cells is

dedicated to a specific type of investigation. These technical developments, whose realization often became quite challenging, would have not been possible without the support from our technical infrastructure services. In the following we focus on the description of such facilities which have been added after finishing the year 2000 report.

Most important are our efforts to achieve pressures much in excess of $p = 4 \text{ GPa}$. For this purpose a high pressure device has been developed which is derived from the Bridgman technique. At room temperature a load is applied to two opposing anvils by an oil-hydraulic press. The anvils are made out of non-magnetic tungsten carbide ($p_{\text{max}} \cong 10 \text{ GPa}$) or sintered diamond ($p_{\text{max}} \cong 25 \text{ GPa}$). In the former case magnetic fields up to 10 T can be applied. The load is maintained by four bolts with nuts. In order to keep the load (i.e. pressure) constant upon cooling each anvil is supported by a stainless steel backing plate and the bolts are made out of a Ti-Al-V alloy. This balances, within a few



2 a)



2 b)

Fig. 2: a) Photographic top view of a setup to determine electrical resistivity in a Bridgman-type Teflon-capsule pressure cell utilizing pyrophyllite as gasket material ($\varnothing_{\text{int}} = 1 \text{ mm}$) and a liquid as pressure transmitting medium. b) top and side view sketches of the pressure cell (1 sample, 2 manometer, 3 Teflon-capsule, 4 pressure transmitting medium, 5 Au-wire, 6 Au-foil, 7 pyrophyllite, 8 wire). (T. Nakanishi)

Abb. 2: a) Einblick in die nach dem Bridgman-Prinzip arbeitende Flüssigkeitsdruckzelle mit Teflonkapsel zur Messung des elektrischen Widerstands (Teflonkapsel: $f = 2 \text{ mm}$). b) Aufsicht- und Schnittskizze der Druckzelle (1 Probe, 2 Manometer, 3 Teflonkapsel, 4 Druckübertragungsmedium, 5 Golddraht, 6 Goldfolie, 7 Pyrophyllit Dichtring, 8 Kupferdraht). (T. Nakanishi)

aus Steatit dienen als Druckübertragungsmedium. Zwischen die Scheiben werden die Proben und das Manometer gelegt (Abb. 1). Als Manometer nutzt man eine dünne Bleifolie, deren Druckabhängigkeit der Übergangstemperatur in den supraleitenden Zustand bekannt ist. Durch den Pyrophyllitring sind acht elektrische Zuleitungen in keilförmigen Gräben verlegt, welche mittels dünner Golddrähte mit den Proben und dem Manometer verbunden sind. Diese Einheit zur Messung des elektrischen Widerstands dient als Ausgangspunkt zur Entwicklung einer Druckzelle zur Messung der Wärmekapazität bei Drücken oberhalb von $p = 4$ GPa.

Als alternativen Weg zur Realisierung höherer Drücke setzen wir eine neue Variante einer Flüssigkeitsdruckzelle zur Messung des elektrischen Widerstands ein. Der Vorteil dieser nach dem Bridgman-Prinzip arbeitenden Druckzelle ist die Schaffung hydrostatischer Druckbedingungen bei Drücken ($p \leq 8$ GPa) weit oberhalb der in üblichen Stempel-Zylinder Druckzellen erreichbaren

Drücke (Abb. 2). Da wir es geschafft haben, acht elektrische Zuleitungen in die Druckkammer (Teflonkapsel) einzuführen, sind jetzt Messungen des elektrischen Widerstands nach der Vier-Punkt-Methode, des Hall-Effekts und der magnetischen Wechselfeldsuszeptibilität (Spulen in der Druckkammer) möglich. Die kompakte Bauweise der Zelle erlaubt ihren Einsatz in Mischungskühlern ($T_{\min} \cong 50$ mK) und in supraleitenden Magneten ($B_{\max} = 20$ T).

Messungen der magnetischen Suszeptibilität mit hoher Auflösung können in einem SQUID-Magnetometer mit Hilfe einer aus hochreinem Cu(Be) gefertigten Flüssigkeitsdruckzelle durchgeführt werden ($p \leq 1$ GPa, $1,8$ K $\leq T \leq 350$ K). Darüber hinaus arbeiten nun weitere Stempel-Zylinder-Druckzellen (Cu(Be), nichtmagnetische Legierung MP35N) erfolgreich in unseren PPM-Systemen der Firma Quantum Design (elektrischer Widerstand, Hall-Effekt, magnetische Suszeptibilität bei: $p \leq 3,2$ GPa, $1,8$ K $\leq T \leq 350$ K).

percent, the different length changes of the materials used for the clamping device, which are due to its different coefficients of thermal expansion. Furthermore, the cross-section of the bolts is minimized to almost reach the elastic limit of the Ti-Al-V alloy when the load is maximum. The pressure chamber is formed by a pyrophyllite gasket. Two steatite disks serve as pressure transmitting medium. The samples and the pressure gauge are placed in between these disks (Fig. 1). The gauge is made out of a thin Pb-foil; its superconducting transition temperature has a known pressure dependence. Across the gasket eight electrical leads are wedged in small gorges. They establish the electrical contact to the samples and the pressure gauge via thin Au-wires. Based on this operating device for measuring the electrical resistivity, we will start tests for measuring the heat capacity at such high pressures.

In another approach we have built up a new type of hydrostatic pressure cell for the determination of the electrical resistivity at $p \leq 8$ GPa. The advanta-

ges of this Bridgman-type Teflon-capsule cell (Fig. 2) using a liquid as pressure transmitting medium, are hydrostatic pressure conditions way in excess of standard piston-cylinder cells of at least up to $p = 6$ GPa. Since eight electrical leads can be introduced, four-probe technique resistivity, Hall-effect and even ac-susceptibility (coil inside the Teflon capsule) can be measured. The compact body of the pressure cell allows for its combination with a dilution refrigerator ($T_{\min} < 50$ mK) and typical superconducting magnets ($B_{\max} = 20$ T).

High resolution magnetic susceptibility can be measured now in a MPMS SQUID magnetometer utilizing high purity Cu(Be)-piston-cylinder cells ($p \leq 1$ GPa, 1.8 K $\leq T \leq 350$ K). Furthermore, various piston-cylinder cells (Cu(Be), nonmagnetic alloy MP35N) have been built and are working successfully in the Quantum Design PPMS ($p \leq 3.2$ GPa, 1.8 K $\leq T \leq 350$ K) to investigate electrical resistivity, Hall-effect and ac-susceptibility.