

Messungen der Wärmekapazität unter hohem Druck: Neue Entwicklungen

Michael Nicklas, Robert Borth, Edit Lengyel, Corneliu F. Miclea und Günter Sparr¹

Messungen der spezifischen Wärme bei tiefen Temperaturen sind eine wichtige und äußerst erfolgreiche Methode zum Studium niederenergetischer Anregungen von Festkörpern. Beispielsweise, gibt die spezifische Wärme einen tiefen Einblick in die Eigenschaften von Schwere-Fermionen Verbindungen bei tiefen Temperaturen. Diese sind oft empfindlich von der Änderung eines äußeren Kontrollparameters wie Druck, chemische Dotierung oder magnetischem Feld abhängig. Hydrostatischer Druck ist eine Möglichkeit einen Übergang von einem magnetischen zu einem unmagnetischen Zustand (oder auch umgekehrt) zu induzieren ohne zusätzliche Unordnung einzubringen oder die Elektronen zu polarisieren. Durch die Wechselwirkung zwischen den f -Elektronen und den Leitungselektronen nehmen die elektronischen Korrelationen stark zu und führen zu ungewöhnlichen physikalischen Eigenschaften und neuartigen Grundzustände in der Nähe des kritischen Punkts, bei dem der magnetische Zustand verschwindet.

Unser gegenwärtiger experimenteller Aufbau zur Messung der Wärmekapazität unter Druck erlaubt es in einem ^3He -Verdampfer minimale Temperaturen von 300 mK und magnetische Felder bis zu 8 T zu erreichen. Zurzeit sind wir in der Lage, unter hydrostatischen Bedingungen bei Benutzung eines flüssigen Mediums zur Druckübertragung bis zu 2,3 GPa zu erreichen. Im Druckbereich bis zu 1,6 GPa benutzen wir eine aus Cu:Be gefertigte Stempel-Zylinder-Druckzelle. Um Drücke oberhalb von 1,6 GPa zu erreichen haben wir eine neue doppelagige Stempel-Zylinder-Druckzelle entwickelt. Diese Zelle besteht aus einem inneren Zylinder der nicht-magnetischen Legierung NiCrAl, welcher in der Lage ist, größere Kräfte als Cu:Be aufzunehmen. Der äußere Druckzellenkörper besteht aus Cu:Be. Beide Druckzellentypen sind in idealer Weise geeignet Proben, großer Probenmassen, typischerweise 400 mg – 500 mg, zu untersuchen. Große Einkristalle sind leider nicht immer verfügbar. Allerdings ist es auch möglich, viele kleine Einkristalle in der Druckzelle zu platzieren. Es ist jedoch schwierig eine große Zahl von

sehr kleinen Einkristallen präzise für Messungen in einem Magnetfeld bezüglich einer speziellen Richtung zu orientieren.

Zu diesem Zweck haben wir eine Miniaturdruckzelle entwickelt, die Messungen der Wärmekapazität an sehr kleinen Einkristallen erlaubt, wenn die präzise Orientierung der Kristalle für die physikalische Fragestellung von entscheidender Bedeutung ist. Diese Stempel-Zylinder-Druckzelle ist nur 8 mm lang und hat eine Gesamtmasse von nur 160 mg. Die Druckzelle, den Druckstempel eingeschlossen, ist komplett aus Cu:Be hergestellt und erlaubt es Drücke bis zu 1,4 GPa zu erreichen. Die Kleinheit der Druckzelle hat den besonderen Vorteil, dass zur Messung der Wärmekapazität Standardmessplattformen benutzt werden können.

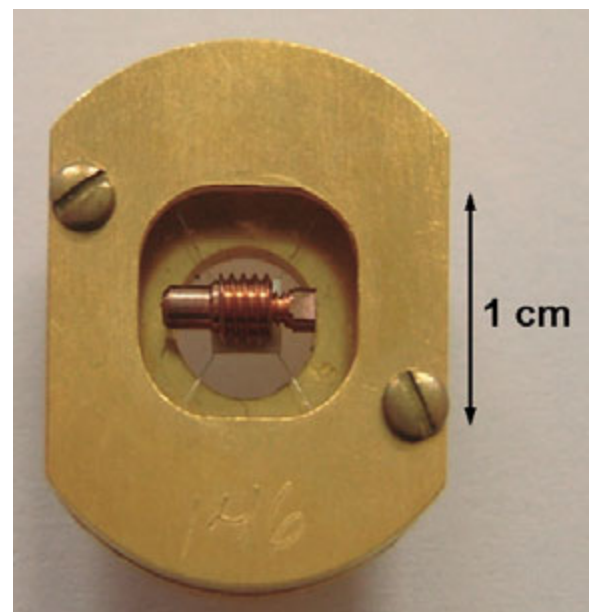


Abb. 1: Miniaturdruckzelle für Wärmekapazitätsmessungen von kleinen Proben. Die Druckzelle liegt auf einer standardisierten Messplattform für spezifische Wärmemessungen in einem kommerziellen Physical Property Measurement System (PPMS) von Quantum Design.

Fig. 1: Miniature pressure cell for heat capacity measurements of small samples. The pressure cell is shown on a standard puck for specific-heat measurements in a commercial Physical Property Measurement System (PPMS) from Quantum Design.

Heat-Capacity Measurements under High Pressure: New Developments

Michael Nicklas, Robert Borth, Edit Lengyel, Corneliu F. Miclea, and Günter Sparn¹

Specific-heat measurements at low temperatures are a very powerful tool to study the low energy excitations of solids. For example, much insight can be gained in the low temperature properties of heavy-fermion compounds. These are highly sensitive to the change of an external control parameter like pressure, chemical doping, or magnetic field. Applying hydrostatic pressure is one way to induce a transition from a magnetic to a non-magnetic state (or vice versa) without introducing additional disorder or polarizing the electrons. Due to the interactions between the f -electrons and the conduction electrons the electronic correlations are strongly enhanced and lead to unusual physical properties and new unconventional ground states at the critical point, at which the magnetic state disappears.

Our present setup for specific heat measurements under pressure allows us to excess temperatures down to 300 mK in a ^3He evaporation cryostat which is equipped with an 8 T superconducting magnet. Presently we can reach up to 2.3 GPa on quasi-hydrostatic conditions, using a liquid as pressure transmitting medium. In the pressure region from ambient pressure to about 1.6 GPa we utilize a piston-cylinder-type pressure cell machined from Cu:Be. To reach pressures beyond ~ 1.6 GPa we recently developed a new double-layer piston-cylinder-type pressure cell. This cell consists of an inner cylinder made from the non-magnetic alloy NiCrAl, keeping much higher forces than Cu:Be, enclosed in an outer cell body consisting of Cu:Be. These pressure cells are ideally suited for the study of large sample masses, typically about 400-500 mg. Large single crystals are not always available, but it is also possible to place a conglomeration of small single crystals inside the pressure cell. However, for specific-heat measurements in magnetic field a large number of small single crystals is needed, and it is very difficult to orient them precisely with respect to the magnetic field.

For this purpose, we developed a new miniature pressure cell allowing us to perform heat-capacity experiments on small single crystals specifically in such cases, where the precise orientation of the

crystals with respect to the magnetic field is crucial for the physical problem. This piston-cylinder type pressure cell is only about 8 mm long and has an overall weight as low as ~ 160 mg. The cell is machined from Cu:Be, including the piston. It allows to reach pressures of up to ~ 1.4 GPa. The small size of the pressure cell has the big advantage that we are able to use it on standard platforms for heat-capacity experiments. For example, it fits on a specific-heat puck used in a commercial *Quantum Design Physical Property Measurement System* (PPMS), enabling measurements in the temperature range down to 350 mK and magnetic fields up to 14 T (Figure 1 shows the miniature pressure cell on such a ^3He PPMS specific-heat puck). For measurements at even lower temperatures, a $^3\text{He}/^4\text{He}$ dilution cryostat can be used. Due to its small dimensions we cannot use a liquid as pressure medium. In our case, lead and *Apiezon-N* grease are serving as pressure gauge and/or pressure medium. We could confirm the still good quasi-hydrostatic conditions inside the pressure

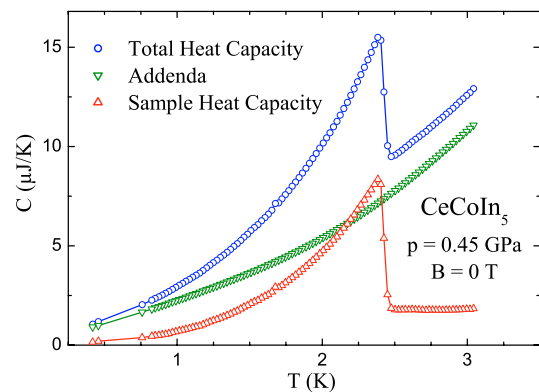


Fig. 2: Heat capacity measurement on CeCoIn_5 at $p = 0.45$ GPa and in zero-magnetic field. The anomaly indicates the superconducting transition at $T_c = 2.4$ K. The total heat capacity is composed of the heat capacity of the pressure cell (addenda) and the sample.

Abb. 2: Wärmekapazitätsmessung an CeCoIn_5 bei $p = 0.45$ GPa ohne angelegtes Magnetfeld. Die Anomalie kennzeichnet den supraleitenden Übergang bei $T_c = 2,4$ K. Die gesamte Wärmekapazität setzt sich aus der Wärmekapazität der Probe und der Druckzelle (Addenda) zusammen.

Zum Beispiel passt sie auf die spezifische-Wärme-Plattform, die in kommerziellen *Quantum Design Physical Property Measurement* Systemen (PPMS) benutzt werden und Messungen im Temperaturbereich bis zu minimalen Temperaturen von etwa 350 mK und magnetischen Feldern bis zu 14 T ermöglichen. In Abb. 1 ist die Miniaturdruckzelle auf einer solchen Plattform gezeigt. Um noch tiefere Temperaturen zu erreichen kann ein $^3\text{He}/^4\text{He}$ Entmischungskryostat eingesetzt werden. Aufgrund der geringen Dimensionen können wir allerdings keine Flüssigkeit als Druckmedium benutzen. In unserem Fall dienen deshalb Blei und *Apiezon-N* als Manometer und Druckübertragungsmedium. Der supraleitende Übergang von Blei bleibt auch unter Druck scharf und bestätigt die immer noch sehr guten hydrostatischen Bedingungen in der Druck-

zelle. Als Beispiel zeigt Abb. 2 Ergebnisse einer Wärmekapazitätsmessung unter einem Druck von 0,45 GPa am Schwere-Fermionen-Supraleiter CeCoIn_5 ($T_c = 2,3$ K unter Umgebungsdruck) ohne äußeres Magnetfeld.

Der erweiterte Druckbereich für Wärmekapazitätsmessungen unter hydrostatischem Druck unter Benutzung eines flüssigen Druckmediums, wie auch die neu entwickelte Miniaturdruckzelle ergänzen und erweitern unsere bislang schon ausgezeichneten experimentellen Möglichkeiten zur Untersuchung thermodynamischer Eigenschaften von Festkörpern unter hohem Druck und bei tiefen Temperaturen.

¹ Derzeitige Adresse: Max-Planck-Institut für Kernphysik, Heidelberg, Deutschland

cell by analyzing the width of the superconducting transition of lead which stays sharp at all pressures. As an example, Figure 2 shows the results of a heat-capacity experiment at a pressure of 0.45 GPa obtained on the heavy-fermion superconductor CeCoIn_5 ($T_c = 2.3$ K at atmospheric pressure) in zero magnetic field. The anomaly in the specific heat corresponds to the superconducting transition. The total heat capacity consists of the heat capacity of sample and addenda (sample holder, pressure cell, and pressure transmitting medium).

The extended pressure range for heat-capacity measurements under hydrostatic pressure using a liquid pressure medium as well as the newly developed miniature pressure cell complement our outstanding experimental expertise in studying the low temperature thermodynamic properties under high pressure.

¹ Present address: Max Planck Institute for Nuclear Physics, Heidelberg, Germany