

Classification
 Physics Abstracts
 0.632

APPAREILLAGE HAUTE PRESSION HYDROSTATIQUE $0 < P < 40$ kbar BASSE TEMPÉRATURE $500 \text{ K} > T > 1,4 \text{ K}$

R. DELAPLACE, G. MALFAIT et D. JÉROME

Laboratoire de Physique des Solides (*),
 Université Paris-Sud, Bât. 510, 91405 Orsay, France

(Reçu le 30 septembre 1975, accepté le 27 novembre 1975)

Résumé. — Nous présentons une enceinte de pression *double étage* en acier, destinée aux expériences sous hautes pressions hydrostatiques $0 < P < 40$ kbar, dans la gamme des températures $1,4 < T < 500$ K. L'étage haute pression utilise la technique des cellules téflon. Nous montrons que, sous certaines conditions, cette cellule fonctionne en joint automatique, tout comme le joint Bridgman, ce qui donne un maximum de garanties en ce qui concerne les problèmes liés à l'étanchéité du liquide sous pression.

Les cycles Pression-Température réalisés sur des jonctions AsGa-Pb et AsGa-Bi, particulièrement fragiles en présence de tout état de contraintes anisotropes, prouvent les bonnes qualités d'hydrostaticité de la pression.

Un volume utile de $1,5 \text{ cm}^3$ sous 40 kbar et un passage électrique comportant 8 fils de mesure, permettent d'envisager l'utilisation de cet appareillage à de nombreuses expériences de physique, sur tous matériaux, aussi fragiles soient-ils.

Abstract. — We describe a double stage steel pressure cell delivering high hydrostatic pressure up to 40 kbar between 500 and 1.4 K. The high pressure stage uses the teflon cell technique. We have shown that under certain circumstances this teflon cell acts as an automatic pressure seal like the Bridgman seal and is therefore very reliable.

Pressure and temperature cycling have been performed with AsGa-Pb and AsGa-Bi junctions which are especially sensitive to the presence of anisotropic stress. The results have proved the good homogeneity of the stress field. The working volume of 1.5 cm^3 at 40 kbar together with the 8 leads electrical feedthrough allows the use of this equipment for numerous experiments even on very fragile samples.

1. Introduction. — Les premiers travaux fondamentaux sur la technologie des hautes pressions ont été développés, pour l'essentiel, par P. W. Bridgman [1]. Les techniques qu'il mit au point lui ont valu d'être l'un des tous premiers expérimentateurs à effectuer des mesures physiques sur des solides, des liquides et des gaz soumis à de très hautes pressions.

Par la suite, de nombreux laboratoires de chimie, de géologie et de physique ont repris les principes de base de ces techniques et les ont adaptés à leurs travaux de recherche, fondamentale ou appliquée.

En physique des solides, l'utilisation de la pression, en tant que paramètre fondamental, s'impose comme le moyen le plus propre et le plus efficace pour étudier l'évolution des propriétés physiques de matériaux, qui se trouvent être intimement liées aux variations des distances interatomiques.

Le plus souvent, les expérimentateurs s'efforcent de faire agir simultanément, sur les matériaux étudiés, les

effets des hautes pressions avec ceux des hautes et basses températures. Du côté des hautes températures on utilise en général des micro fours placés à l'intérieur de la cellule sous pression. On a réalisé ainsi la synthèse du diamant sous $p = 80$ kbar et $T = 1\,700$ K [2].

Pour descendre en température un échantillon sous pression, on thermalise l'ensemble : échantillon + enceinte de pression, dans un cryostat. On peut ainsi descendre à quelques milli-degré K avec des micro bombes et réaliser, par exemple, des expériences d'orientation nucléaire sous pression [3].

Le domaine des pressions et des températures à explorer, la qualité de la pression à réaliser [4] conditionnent le choix du type d'appareillage à utiliser. Ces exigences conduisent à scinder le domaine des pressions en trois catégories.

1.1 DOMAINE DES TRÈS HAUTES PRESSIONS DYNAMIQUES. — Ces pressions sont obtenues par les ondes de choc, provenant en général d'explosifs classiques, dont la propagation conduit à des pressions sensiblement isotropes. On peut ainsi obtenir des pressions de 10 Mbar pendant quelques micro-secondes. Par ce

(*) Laboratoire associé au C. N. R. S. Ce travail a été effectué avec l'aide du contrat D. G. R. S. T. n° 70-02-275.

principe, pression et température ne sont plus deux paramètres indépendants, car le solide se comporte alors de façon adiabatique.

1.2 DOMAINE DES TRÈS HAUTES PRESSIONS STATIQUES.

— Dans ce domaine, où pression et température sont deux paramètres indépendants, on peut conserver la pression pendant plusieurs jours sans difficultés particulières.

L'échantillon, noyé dans un milieu transmetteur de pression très plastique mais néanmoins solide, est soumis à une pression d'autant plus proche d'une pression hydrostatique que la résistance au cisaillement de ce milieu est faible. On dit fréquemment que les pressions réalisées dans ces conditions sont quasi hydrostatiques. Les principaux milieux transmetteurs de pression utilisés sont : la pyrophilite, le talc, le chlorure d'argent.

Ces hautes pressions sont obtenues à l'aide de quatre principaux types d'appareillages.

a) Les enclumes de Drickamer (jusqu'à 500 kbar) [5].

b) Les enclumes de Bridgman (jusqu'à 250 kbar) [6].

Leur adaptation aux très basses températures a notamment permis de mettre en évidence que certains éléments deviennent supraconducteurs sous pression [7].

c) Les appareils en ceintures, ou *Belts* développés par Hall [8] aux Etats-Unis, qui peuvent atteindre 150 kbar.

Plus récemment les enclumes en diamant avec joints toriques métalliques ont été utilisés avec succès par différents groupes jusqu'à 150 kbar [9].

d) Les appareils tétrahédriques [10], à enclumes multiples, actionnées ensemble par un vérin hydraulique ; ils donnent des performances sensiblement équivalentes aux *Belts*.

Avec ces appareils les variations en température s'effectuent, le plus souvent, après montée en pression à la température ambiante.

1.3 DOMAINE DES HAUTES PRESSIONS STATIQUES. —

C'est celui où les pressions peuvent être parfaitement hydrostatiques. Les échantillons sont alors soumis à des contraintes parfaitement isotropes. Le fluide utilisé peut être :

— *Un gaz*, généralement l'hélium ou l'argon, dont la pression limite se situe actuellement vers 15 kbar de par les difficultés techniques que pose le maintien, sans fuites, d'un gaz sous très haute pression. Cependant, un gaz devient le fluide indispensable lorsque les échantillons sont facilement polluables ou que les mesures physiques nécessitent des changements de pression aux basses températures [11]. Avec l'hélium, la pression maximum hydrostatique réalisable est donnée par sa courbe de fusion qui, à titre indicatif, se situe à 14,1 kbar [12] à la température de 77 K.

— *Un liquide*, dont les plus couramment utilisés sont l'isopentane et le mélange, de rapport 1 : 1, isopentane-

alcool isoamilique qui, à la température ambiante se solidifient : pour le premier vers 25 kbar et pour le second vers 40 kbar. Jayaraman [13] a construit un appareillage permettant d'atteindre 40 kbar en pression hydrostatique, mais il ne peut descendre au-dessous de 100 K de par les dimensions de son ensemble. Il obtient ces températures par circulation d'azote liquide autour de sa chambre sous pression.

C'est ce domaine des pressions hydrostatiques que nous avons cherché à développer afin d'étendre notre gamme de pression qui, jusqu'alors était limitée à 17 kbar [14]. La raison pratique de cette limite résultait essentiellement de la résistance mécanique du capillaire souple en acier inoxydable, transmetteur de pression entre le générateur et la bombe placée dans le cryostat.

Cette disposition — générateur, capillaire souple, bombe de pression — s'étant avérée très *commode* aux cours des expériences, nous avons cherché à étendre notre gamme de pression tout en conservant cette facilité de manipulations.

Ceci nous a amené à étudier une enceinte de pression *double étage*. L'étage basse pression, réuni au générateur par le capillaire souple, est relié à l'étage haute pression par un piston différentiel. La technique des cellules téflon a été utilisée dans l'étage haute pression. Les expériences sous pression étant toujours un peu *lourdes*, nous avons particulièrement travaillé la fiabilité de cet ensemble, laquelle est intimement liée au problème de l'étanchéité qui reste le problème tout à fait fondamental des pressions hydrostatiques.

A ce sujet nous avons isolé le liquide sous pression par des joints qui sont toujours automatiques, c'est-à-dire que la pression dans le système assurant l'étanchéité est toujours supérieure à la pression régnant dans le fluide sous pression, quelle que soit la valeur de cette pression.

Actuellement, nous réalisons, sans problèmes particuliers, des pressions allant jusqu'à 40 kbar et nous décrivons des cycles de température depuis la température ambiante, jusqu'à 1,4 K dans un cryostat conventionnel. Nous allons décrire l'ensemble de notre appareillage ainsi que les expériences originales qu'il nous a permis de réaliser.

2. Description du dispositif expérimental. —

L'ensemble de notre enceinte de pression est représentée sur la figure 1. Dans le but d'éclaircir sa description, nous allons la subdiviser arbitrairement en trois parties essentielles de façon à présenter la réalisation et le fonctionnement de chacune d'entre elle. Ainsi nous étudierons successivement : la réalisation de l'ensemble double étage, la description et le principe de fonctionnement des cellules téflon, et, pour terminer, la technique utilisée pour les passages électriques.

2.1 ENSEMBLE DOUBLE ÉTAGE. — Il se compose de deux enceintes vissées I et II au travers desquelles coulisse un piston différentiel en carbure de tungstène (1), de rapport de section : $S_I/S_{II} = 4$ et de

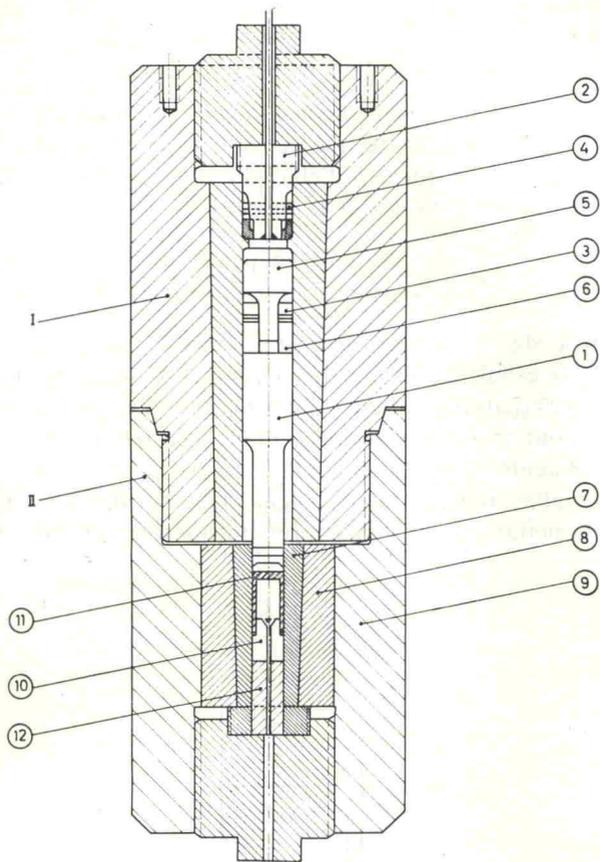


FIG. 1. — Schéma d'ensemble de l'enceinte de pression double étage.

qualité Standard G1, qui constitue l'élément amplificateur de pression. L'arrivée du liquide, sous basse pression, est assurée par un capillaire souple en acier inox (\varnothing ext. 3,15 ; \varnothing int. 0,3) lequel établit la liaison entre le générateur de pression, construit par la Sté Basset, 92-Sèvres, situé en amont de l'obturateur (2) sur lequel il est vissé et brasé. L'étanchéité du liquide sous pression dans l'étage I est assurée d'une part à l'aide d'un joint glissant à serrage automatique de type Bridgman (3), côté piston, et d'autre part, par un système de 3 joints en métal (4) décrits dans [14], côté obturateur. L'obturateur (2), le champignon (5), la bague (6) et les écrous de serrage sont en acier Maraging traité à 180 hbar. Les deux enceintes I et II sont constituées de cylindres frettés ; les emmanchements ont été effectués uniquement par dilatation thermique. L'âme de l'enceinte basse pression I est en acier Maraging traité à 180 hbar alors que la frette est en acier BMV 4 Aubert et Duval traité à 150 hbar.

L'enceinte haute pression II est constituée de 3 enceintes, l'âme (7), en acier Maraging traité à 230 hbar, a subi un traitement de nitruration-durété superficielle 900 Vickers — avant que la chambre de \varnothing 15 ne soit soigneusement rôdée, ceci afin de réduire les frottements qui, comme nous le verrons dans la seconde partie, jouent un rôle essentiel dans le bon

fonctionnement des cellules téflon. Les deux frettes sont en acier BMV4 Aubert et Duval. La première (8) est traitée à 185 hbar, la seconde (9) à 150 hbar.

L'ensemble obturateur-cellule téflon (10) et (11) est soutenu par un cylindre en carbure de tungstène (12), de qualité G2, fretté à sa base par une bague en acier Maraging traitée à 180 hbar. L'ensemble est soutenu par l'écrou de serrage, qui est utilisé pour effectuer la mise en place de cet ensemble.

Les calculs des enceintes ont été effectués dans l'hypothèse de Lamé, par laquelle on suppose que la pression s'applique uniformément sur toute la longueur de la chambre, ce qui est bien vérifié pour les contraintes résultant des frettages, mais très critiquable en ce qui concerne la répartition des contraintes à l'intérieur des enceintes soumises à la pression.

En l'absence d'informations sur la courbe de résistance intrinsèque des aciers Maraging et BMV4 nous avons supposé que la limite élastique au cisaillement était, comme pour les aciers de type fragile, d'environ 0,8 fois la limite élastique de traction pure. Le critère de Mohr-Caquot a été utilisé pour combiner les contraintes.

2.2 GÉNÉRALITÉS SUR LES SYSTÈMES ÉTANCHES AUTOMATIQUES. APPLICATION AUX CELLULES TÉFLON. —

La technique, dite, des cellules téflon, qui consiste à emplir de liquide une boîte en téflon et à soumettre l'ensemble à l'effort d'un piston, fut utilisée pour la première fois en 1956 par Hamann et Teplitzky [15].

Cette technique succède au joint Bridgman, lequel, d'un fonctionnement très sûr jusque vers 23 kbar, devient pratiquement inutilisable pour des pressions supérieures, de par l'insuffisance des matériaux existants, utilisés pour sa construction.

Rappelons que ce système (Fig. 2) a pour but de créer dans le joint en caoutchouc, lequel assure l'étanchéité du fluide sous pression, une pression, P , supérieure et surtout proportionnelle à celle qui règne dans le fluide.

$$P = \frac{F}{S - s}$$

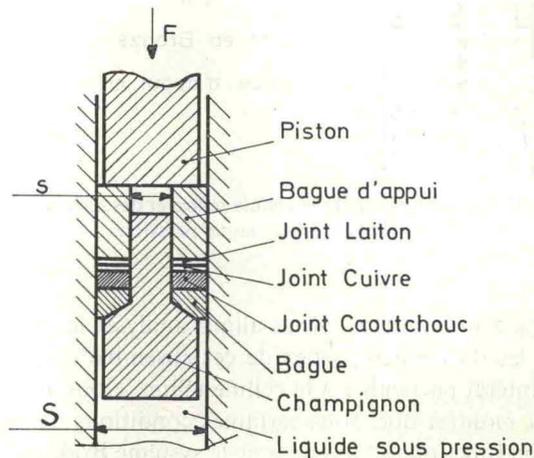


FIG. 2. — Joint Bridgman.

Il faut d'ailleurs remarquer que la condition d'isotropie de P , sur le pourtour du joint, ne sera réalisée que dans la mesure où le caoutchouc se comporte de façon hydrostatique, ce qui, vraisemblablement, n'est que partiellement vrai, surtout aux hautes pressions. Lorsque la pression P , dépasse une certaine valeur, le *champignon* a tendance, sous l'effet d'un ensemble de contraintes complexes à être sectionné au niveau du joint. De par son principe de fonctionnement, le joint *type Bridgman* doit réaliser un compromis entre, d'une part, une surpression suffisante pour assurer l'étanchéité, laquelle est imposée par le rapport s/S et la qualité d'hydrostaticité du joint, et, d'autre part, des caractéristiques mécaniques élevées pour les matériaux constituant la bague et le *champignon* qui, de plus, doivent présenter une bonne résilience de par les discontinuités de contraintes inhérentes à la géométrie de cet ensemble.

C'est pour remédier à ces inconvénients que Hamann, puis Geller [16] et Jayaraman [13] ont remplacé le joint Bridgman par une cellule téflon pour maintenir étanche un liquide sous haute pression.

Dans notre montage, représenté sur la figure 3, nous avons réalisé une géométrie voisine de celle adoptée par

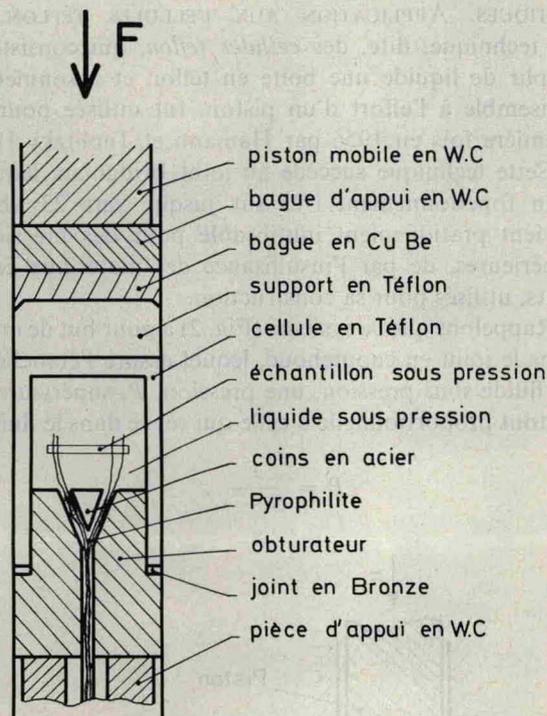


FIG. 3. — Disposition de la cellule téflon et des différents joints dans l'enceinte haute pression.

Kang Soo Kim [17]. Nous allons analyser le rôle joué par les différentes parties de cet ensemble en portant un intérêt particulier à la cellule téflon. Nous allons en effet montrer que, sous certaines conditions, la cellule téflon fonctionne, tout comme le système Bridgman, en *joint automatique* et donne son équivalent sur le plan de

l'étanchéité. Ce fait est constaté par l'expérience qui montre qu'une fuite éventuelle, au cours d'une montée en pression, tend d'elle-même à se colmater.

2.2.1 *Etude de la cellule téflon.* — Jayaraman *et al.* [13] ont constaté que ce qu'il peut être convenu d'appeler le coefficient d'efficacité d'une cellule, lequel pourrait être défini par le rapport

$$\eta = \frac{\text{pression reçue par le liquide}}{\text{pression exercée par le piston}}$$

dépendait de facteurs géométriques (diamètre extérieur de la cellule, épaisseur des parois) et de facteurs physiques (nature du fluide comprimé et qualité du téflon).

Pour mettre en évidence l'influence relative de ces différents facteurs, nous allons, à partir d'un modèle simplifié, représenté sur la figure 4, établir des relations permettant de mieux comprendre son fonctionnement.

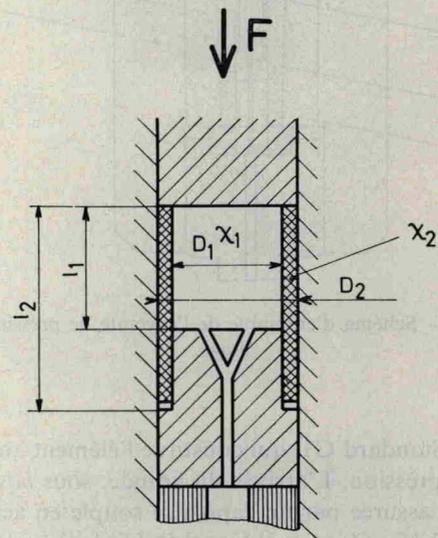


FIG. 4. — Cylindre téflon ; modèle simplifié de la cellule téflon.

Dans ce premier modèle, nous négligerons les effets des frottements entre parois métalliques et cellule téflon. Nous assimilerons la cellule téflon à un simple cylindre en négligeant, pour le moment l'influence du fond, qui, comme nous le verrons, n'intervient qu'en tant que coefficient correcteur dans les relations que nous allons établir.

Le coefficient de Poisson, ν , du téflon, est très voisin de 0,5. Ce coefficient, qu'il est difficile d'atteindre par une mesure directe de par la nature physique du téflon, peut être déduit de la relation qui lie certains coefficients élastiques :

$$\chi = \frac{3(1 - 2\nu)}{E}$$

où χ est le coefficient de compressibilité et E le module d'Young.

Nous avons mesuré ces deux coefficients à la température de 20 °C sur le téflon utilisé pour nos cellules

Le coefficient de compressibilité, χ , est calculé à partir des mesures des variations relatives de volume $|\Delta V/V|_{\text{téflon}}$ en fonction de la pression hydrostatique appliquée, P , représentées sur la figure 5.

$$\chi = -\frac{1}{V} \cdot \frac{\partial V}{\partial P}$$

Nous avons déterminé $|\Delta V/V|_{\text{téflon}}$ par une méthode différentielle, consistant à mesurer, pour différentes pressions, la variation de volume, ΔV , d'un ensemble : liquide de compressibilité connue + téflon.

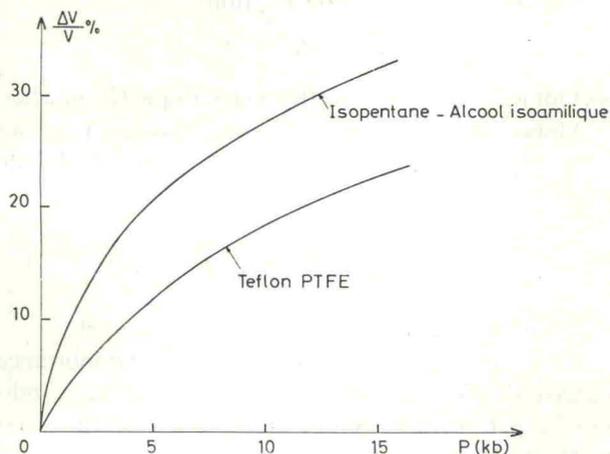


FIG. 5. — Variations de volume en fonction de la pression du téflon et du mélange de rapport 1 : 1 isopentane alcool isoamilique.

Le module d'Young du téflon, E , a été déduit de l'enregistrement de la courbe : effort-déformation, effectué dans le domaine élastique du téflon, sur une éprouvette cylindrique soumise à un effort de compression simple. Les calculs donnent :

$$\chi_0^{\text{1kbar}} = 3,5 \times 10^{-6} \text{ cm}^2/\text{N}; \quad E = 4,5 \times 10^4 \text{ N/cm}^2$$

d'où $\nu = 0,47$.

Ces valeurs de E et ν sont sensiblement celles données par les constructeurs, compte tenu des dispersions dues à la nature du matériau.

Cette remarque nous permet de considérer que l'ensemble liquide + téflon se comporte, devant les efforts appliqués, comme deux liquides de compressibilités respectives χ_1 et χ_2 . L'expérience nous ayant par ailleurs montré que la cellule en téflon retrouve très exactement ses dimensions d'origine après un cycle de pression, il semble légitime, compte tenu des hypothèses simplificatrices adoptées, de supposer négligeables la variation de D_1 sous l'effet de F . S'il n'en était pas ainsi, la cellule, compte tenu de la très faible résistance en compression pure du téflon, n'aurait certainement pas manqué de se détruire. L'équilibre de l'ensemble impose que :

$$F = F_1 + F_2 \quad (1)$$

où F_1 et F_2 sont les efforts exercés respectivement sur le liquide et la section annulaire de la cellule en téflon.

Pour résoudre ce système hyperstatique, écrivons que, sous l'effet de F , la déformation de l'ensemble doit satisfaire à la condition :

$$\Delta l_1 = \Delta l_2 \quad (2)$$

avec

$$\Delta l_1 = \chi_1 \cdot \frac{F_1 l_1}{S_1} \quad \text{et} \quad \Delta l_2 = \chi_2 \frac{F_2 l_2}{S_2}$$

La résolution de (1) et (2) donne :

$$F_1 = \frac{F}{1 + \frac{\chi_1 S_2 l_1}{\chi_2 S_1 l_2}} \quad F_2 = \frac{F}{1 + \frac{\chi_2 S_1 l_2}{\chi_1 S_2 l_1}}$$

d'où les valeurs respectives des pressions dans le fluide et au contact téflon-piston, téflon-obturateur

$$P_1 = \frac{F_1}{S_1} \quad \text{et} \quad P_2 = \frac{F_2}{S_2}$$

Ces relations montrent que la pression P_2 , entre téflon et respectivement obturateur et piston est proportionnelle à F , ce qui prouve, à la condition que l'ensemble soit étanche au départ : $P_2 > P_1$, que le système fonctionne en joint automatique.

On voit également très bien apparaître l'influence relative des facteurs géométriques : S_2/S_1 , l_1/l_2 et physiques χ_1/χ_2 de la cellule et de son contenu.

Avec nos conditions expérimentales

$$\frac{\chi_1}{\chi_2} = \frac{8,5 \times 10^{-6} \text{ cm}^2/\text{N}}{3,5 \times 10^{-6} \text{ cm}^2/\text{N}}$$

(compressibilités moyennes entre 0 et 1 kbar)

$$\frac{S_2}{S_1} = \frac{42 \text{ mm}^2}{113 \text{ mm}^2}; \quad \frac{l_1}{l_2} = \frac{16 \text{ mm}}{24 \text{ mm}}$$

et en supposant que $F = 10^4 \text{ N}$.

On trouve :

$$P_1 = 55 \frac{\text{N}}{\text{mm}^2} \quad \text{et} \quad P_2 = 89 \frac{\text{N}}{\text{mm}^2}$$

et on vérifie bien que les conditions d'étanchéité sont satisfaites : $P_2 > P_1$.

Les expressions donnant F_1 et F_2 montrent également la marche à suivre pour optimiser les cellules téflon, c'est-à-dire obtenir un coefficient d'efficacité qui soit le plus proche de l'unité tout en satisfaisant, bien entendu, aux conditions d'étanchéité. Nous reprendrons ce point après avoir discuté des facteurs correctifs, relatifs à l'influence du fond en téflon et des frottements cellule-parois, dont on peut tenir compte qualitativement.

La présence du fond en téflon, représenté sur la figure 6, agit comme si le fluide comprimé était un

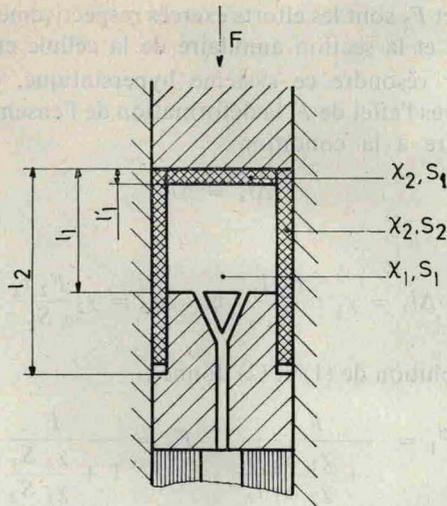


FIG. 6. — Cellule téflon : influence du fond.

ensemble de deux systèmes élastiques de coefficient de compressibilité moyen, χ , défini par l'expression

$$\chi = \chi(\text{liquide} + \text{téflon}) = \chi_1 \left\{ 1 + \frac{l_1 \{ \chi_2 - \chi_1 \}}{l_1 \chi_1} \right\}$$

dans nos conditions expérimentales $l_1' = 3 \text{ mm}$: on trouve

$$\bar{\chi}_0^{\text{lkbar}} = 7,6 \times 10^{-6} \text{ cm}^2/\text{N}.$$

Les expressions de F_1 et F_2 précédentes deviennent :

$$F_1 = \frac{F}{1 + \frac{\chi S_2 l_1}{\chi_2 S_1 l_2}} \quad F_2 = \frac{F}{1 + \frac{\chi_2 S_1 l_2}{\chi S_2 l_1}}$$

D'où

$$P_1 = \frac{F_1}{S_1} = 57,5 \frac{\text{N}}{\text{mm}^2}$$

et

$$P_2 = \frac{F_2}{S_2} = 84 \frac{\text{N}}{\text{mm}^2}.$$

C'est l'expérience qui nous a suggéré que le fond n'intervenait, dans l'étanchéité de l'ensemble, qu'au moment de la mise en place de la cellule, et qu'il n'y participait, vraisemblablement pas, au cours de la montée en pression. Dès que la différence des pressions $P_2 - P_1$ excède largement la résistance au cisaillement du téflon un cisaillement doit se produire dans le fond de la cellule.

Cet effet a été observé à très haute pression, mais n'altère pas l'étanchéité de la cellule.

Nous avons en effet constaté, après chaque démontage, qu'il est cisailé au droit de S_1 , ce qui se comprend si on considère que la cellule, au droit de cette section, est soumise, d'après notre modèle, à une très importante discontinuité de contraintes.

Quant aux frottements entre cellule téflon et parois

en acier, ils ont pour effet de créer entre les sections haute et basse du cylindre téflon un gradient de pression. Ainsi l'effort de contact cellule-parois au niveau de l'obturateur est inférieur à celui calculé d'une quantité justement égale à la valeur de ces frottements. Il semble difficile d'en donner une estimation numérique, même approximative de par la méconnaissance des coefficients du frottement qui, sous ces pressions de contact, sont certainement assez éloignés des frottements de Coulomb.

On peut seulement dire que, pour la partie l_1 , soumise directement à la pression du liquide, les efforts de frottement sont donnés par la relation :

$$f = \mu \cdot \pi D_2 \cdot l_1 \cdot P_1$$

μ étant le coefficient de frottement statique téflon-acier.

Alors que, pour la partie $|l_2 - l_1|$ les considérations d'équilibre montrent que l'on doit avoir une loi du type :

$$F = \pi \frac{D_2^2 - D_1^2}{4} \cdot P_0 \cdot \exp \left[- \frac{4}{D_2 - D_1} \mu (l_2 - l_1) \right]$$

P_0 étant la pression qui existe à $l_2 - l_1 = 0$.

Il faut aussi remarquer que, d'une part, l'importance relative des frottements décroît lorsque, toutes conditions expérimentales restant égales par ailleurs, le diamètre de la chambre augmente et que, d'autre part, pour une même valeur du rapport l_2/l_1 , l'étanchéité de la cellule n'est certainement plus assurée pour une cellule très longue par le fait que l'effort de frottement augmente avec la longueur de la cellule ce qui diminue d'autant la valeur de la pression de contact cellule-obturateur.

Dans nos conditions expérimentales, l'efficacité de l'ensemble, qui, en plus des facteurs physiques et géométriques de la cellule et de son contenu, tient compte de l'effort de frottement cellule-parois ainsi que des frottements dus au joint Bridgman du 1^{er} étage, est voisin de 80 % pour $P = 30 \text{ kbar}$.

L'intérêt d'une optimisation des cellules téflon est lié, en premier lieu, aux caractéristiques mécaniques du piston, qui, au voisinage du congé de raccordement entre S_1 et S_{II} , est soumis à des concentrations de contraintes importantes malgré tout le soin apporté à sa réalisation. D'après les relations donnant F_1 et F_2 , on voit que la manière pratique la plus simple pour accroître η serait d'augmenter l_1/l_2 de façon à assurer P_2 minimum pour que la cellule soit étanche. Le rapport χ_1/χ_2 est fonction du domaine expérimental qui, sous ces pressions, impose, d'une part l'emploi du mélange isopentane alcool-isoamilique et, d'autre part, un matériau qui possède des constantes élastiques voisines de celles du téflon PTFE utilisé lorsque ce mélange est comprimé.

Il est également difficile de diminuer, dans des proportions importantes, l'épaisseur des parois pour des raisons d'usinage et surtout de facilité de mise en place de l'ensemble dans la chambre compte tenu du léger

serrage cellule-chambre réalisé, qui est voisin de 0,1 mm.

Au cours de la descente en température de cet ensemble, qui, rappelons-le, est soumis à un effort sensiblement constant F , le rapport P_1/P_2 variera comme les variations relatives de $\chi_1(T)/\chi_2(T)$ mais également comme celle du rapport des coefficients de dilatation thermique $\lambda_2(T)/\lambda_1(T)$ du téflon et de son contenu. Nous ne pouvons évaluer P_1 avec précision à basse température par ces calculs de par la méconnaissance de ces coefficients. Il semble cependant raisonnable, par le fait que la cellule téflon et son contenu ont vraisemblablement des variations relatives pas trop différentes, de dire que la pression devrait varier assez peu entre la température ambiante et celle de l'hélium liquide. Un étalonnage pourrait d'ailleurs être envisagé à partir de l'étude des variations de la température supraconductrice de métaux tels que le plomb en fonction de la pression qui a été effectuée par ailleurs.

L'obturateur supportant la cellule est en acier Maraging traité à 180 kbar.

2.2.2 Rôle des différents joints. — L'ensemble des différents joints représentés sur la figure 3 — joint en bronze, en téflon, en CuBe — ont essentiellement pour effet d'empêcher un éventuel fluage de la cellule lorsque la chambre se dilate sous l'effet de la pression. La bague en carbure de tungstène sert de tampon entre le piston et le CuBe. Nous avons en effet constaté qu'une rupture éventuelle de cette bague préservait le piston.

Le jeu entre la chambre et ces différents joints est voisin de 0,02 mm au montage.

2.3 PASSAGES ÉLECTRIQUES. — Parmi différentes géométries possibles nous avons adopté celle utilisée par [18] qui présente l'avantage d'une grande facilité d'exécution. Le passage électrique que nous avons réalisé est représenté sur la figure 7.

Dans notre montage actuel 8 fils de $\varnothing 0,2$ mm, débouchent à l'intérieur de la cellule. Six d'entre eux, en cuivre, sont réservés à des mesures électriques : deux pour mesurer la pression avec une jauge managane étalonnée et quatre pour des mesures résistives sur les échantillons par la méthode quatre points. Les deux autres fils : l'un en cuivre, l'autre en constantan, forment la soudure à température variable d'un thermocouple Cu-constantan. Ces fils sont noyés dans de la poudre de pyrophyllite selon le processus suivant :

a) Mise en place d'environ 0,3 mm de poudre de pyrophyllite tassée, épousant la géométrie du cône, à l'aide d'un poinçon de même angle.

b) Positionnement des 8 fils à l'aide d'un montage approprié.

c) Mise en place d'une seconde épaisseur de pyrophyllite par le même processus qu'en a) (épaisseur 0,3 mm).

d) Emmanchement du coin. C'est un simple cône, en acier Maraging traité à 180 hbar.

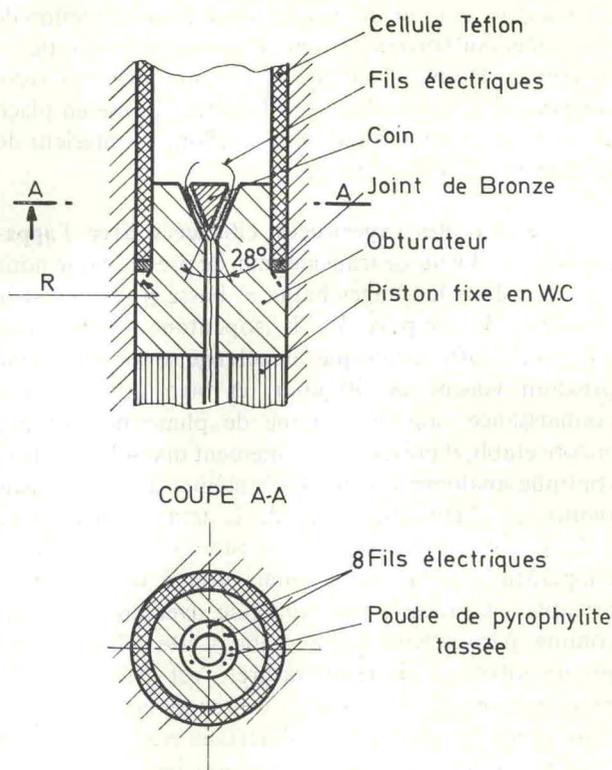


FIG. 7. — Passage électrique.

Nous constatons que ce système fonctionne en joint automatique. La pression de contact obturateur-pyrophyllite, laquelle conditionne l'étanchéité du passage, est assurée au départ par l'effort exercé pour l'emmanchement du coin.

Au cours de la montée en pression, elle est proportionnelle à la pression qui règne dans la cellule.

La réalisation de ces passages demande quelques montages mécaniques pour effectuer la mise en place pyrophyllite-fils-pyrophyllite avant l'emmanchement du coin. Ceux-ci, bien que très simples, sont cependant nécessaires si l'on veut être assuré d'une bonne reproductibilité pour la fabrication de ces obturateurs. On peut d'ailleurs, très certainement envisager des expériences nécessitant plus de 8 fils avec cette technique.

Dans le domaine des pressions réalisées, l'isolement électrique, au cours des montées en pression reste excellent : supérieur à 1 M Ω .

Il est cependant nécessaire, après un cycle de pression, d'effectuer une passe de tour, sur le diamètre $\varnothing 15$ de l'obturateur, qui subit un gonflement de 0,1 à 0,2 mm. Il est également constaté, après plusieurs cycles de pression (trois ou quatre) que celui-ci présente une amorce de rupture au voisinage de la partie soumise à la surpression au droit du contact obturateur cellule téflon (selon la ligne pointillée R sur la Fig. 7). Cette rupture, constatée après démontage, n'a jamais constitué une gêne en cours d'expérience. Ceci est vraisemblablement dû au fait que l'obturateur est soumis, sur son pourtour, hormis la surface de l'orifice de passage des fils, à une pression *quasi hydrostatique*.

Le fluage du joint en bronze évite à la cellule téflon de s'extruder au travers du jeu réalisé entre obturateur-chambre, lequel, bien qu'étant minimum, s'avère cependant indispensable pour faciliter la mise en place de l'ensemble, obturateur-cellule téflon, à l'intérieur de la chambre lors du montage.

3. Résultat des expériences effectuées avec l'appareillage. — Le fluide transmetteur de pression que nous utilisons dans les étages haute et basse pression est le mélange, de rapport 1 : 1 isopentane, alcool iso-amilique. Outre le fait que ce mélange se solidifie à une pression voisine de 40 kbar, et bien que, à notre connaissance, son diagramme de phase ne soit pas encore établi, il présente certainement une solidification continue analogue à celle des systèmes à deux constituants, car l'enregistrement de la température de ce mélange lors des montées en pression, puis descente en température, ne nous a jamais donné de transition brusque analogue à celle obtenue avec un corps pur comme, par exemple l'isopentane. Cette solidification, sur un intervalle de température, s'est avérée être de première importance lorsque des expériences de physique sont réalisées sur des matériaux particulièrement fragiles comme par exemple les couches minces. Elle minimise vraisemblablement les gradients de pression, qui ne manquent certainement pas de se produire lors de la solidification d'un corps pur.

Nous présentons ci-dessous les résultats de quelques-unes des expériences effectuées avec notre appareillage. Les figures 8 et 9 représentent des enregistrements effectués sur un monocristal de bismuth de \varnothing 1 mm et de longueur 3 mm, montrant les transitions du 1^{er} ordre solide \rightleftharpoons solide du bismuth : Bi I Bi II à 25,4 kbar et Bi II Bi III à 27,5 kbar détectées, pour la figure 8, par une mesure résistive à 4 points et, pour la figure 9, par la détection des chaleurs latentes de transformation obtenue très simplement en collant, à la laque d'argent, le monocristal sur la pointe du thermo-couple cuivre-constantan. La figure 10 représente la variation de la résistance de l'Ytterbium en fonction de la pression, celle-ci étant détectée par la jauge manganine. La tran-

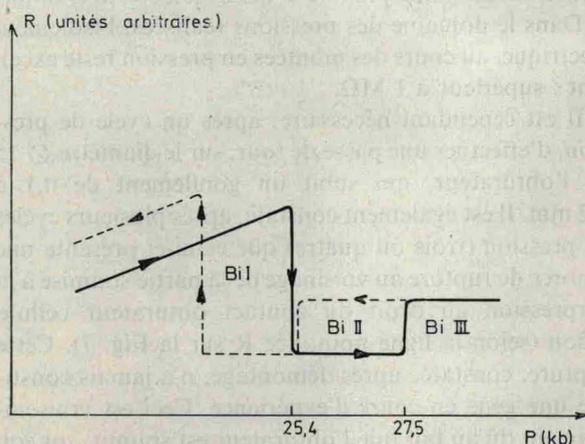


FIG. 8. — Transitions Bi I \rightleftharpoons Bi II et Bi II \rightleftharpoons Bi III du bismuth obtenues par la méthode résistive.

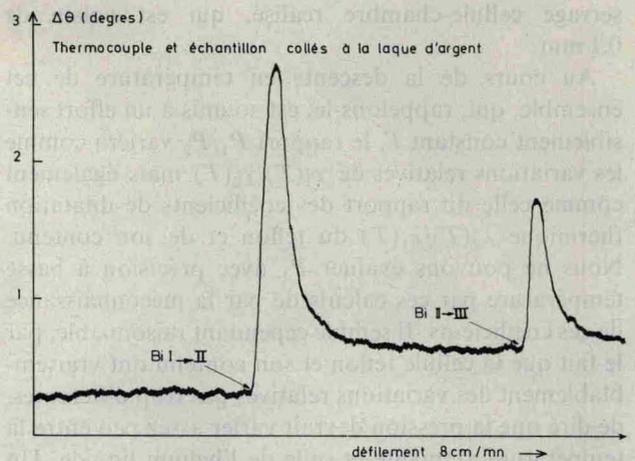


FIG. 9. — Transitions Bi I \rightleftharpoons Bi II et Bi II \rightleftharpoons Bi III du bismuth obtenues par l'enregistrement des chaleurs latentes de transformation.

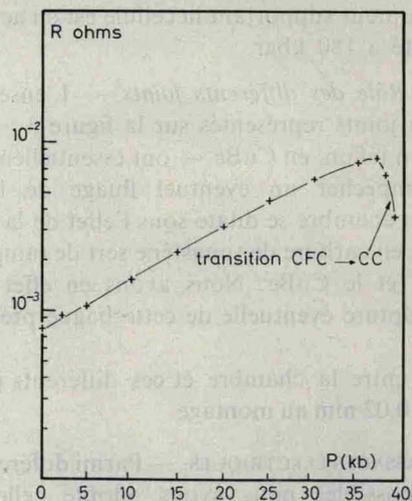


FIG. 10. — Variation de la résistance électrique de l'Ytterbium sous pression. Mise en évidence de la transition C. F. C. \rightarrow C. C.

sition C. F. C. \rightarrow C. C. apparaissant vers 38 kbar est en accord avec les résultats obtenus par Mc Whan [20].

Nous avons par ailleurs travaillé sur des couches minces AsGa-Pb et AsGa-Bi [19]. Le parfait état de ces jonctions, particulièrement fragiles à tout état de contraintes non parfaitement isotropes, prouve la très bonne hydrostaticité de la pression ce qui est tout à fait indispensable pour ce genre d'expériences.

Bien qu'il soit assez difficile d'apprécier la valeur de la pression à basse température, on peut cependant penser qu'avec un tel montage, à deux étages, la perte de pression doit être minimum par le fait que le mélange, côté basse pression, se solidifie à une température plus basse que celui du côté haute pression et qu'il est alors possible de maintenir une pression constante dans cet étage à l'aide du générateur de pression.

On peut négliger la contraction thermique du milieu compresseur entre le point de solidification et la température de l'hélium liquide (lorsqu'on évalue la pression à la jauge manganine). Cette hypothèse est justifiée

par la cohérence des résultats expérimentaux à basse température, aussi bien avec l'appareillage à 17 kbar qu'avec celui à 40 kbar.

4. Conclusion. — Nous avons conçu et réalisé un ensemble expérimental destiné à être utilisé pour effectuer des mesures physiques sous hautes pressions hydrostatiques : $0 < P < 40$ kbar, dans une gamme de température comprise entre 500 K et 1,4 K.

Son originalité essentielle réside dans le fait d'avoir associé et surtout adapté un certain nombre de techniques existantes.

Notre principal souci a été de construire un appareillage d'utilisation commode et de fiabilité maximum permettant à l'utilisateur d'effectuer des mesures physiques aussi propres que possible avec la technique adoptée et ceci, à frais de fonctionnement réduits.

L'emploi d'un double étage, avec piston différentiel comme élément amplificateur de pression, permet d'assurer une très bonne maniabilité à cet ensemble de par l'emploi d'un capillaire souple, dont la pression d'éclatement se situe vers 17 kbar, reliant l'ensemble haute pression au générateur de pression. Ce piston est, par ailleurs, soumis à un effort qui peut être maintenu constant pendant la période précédant la solidification. Ceci est réalisé aisément en maintenant la pression constante dans l'étage basse pression à l'aide du générateur. Il en résulte que la solidification s'effectue à pression aussi constante que possible d'autant que l'on utilise un fluide constitué du mélange de rapport 1 : 1, alcool isoamilique isopentane, qui, vraisemblablement, se solidifie sur un écart de température.

Les expériences que nous avons envisagées nécessitaient l'emploi de 8 fils électriques. Ce nombre peut, très certainement être augmenté en cas de besoin de par la technique utilisée. La mise en place d'un thermocouple à l'intérieur de la cellule, permet de mesurer, sans difficultés, la température sur l'échantillon.

Nous avons également montré qu'une cellule téflon, technique employée côté haute pression, fonctionnait sous certaines conditions, en joint automatique et donnait, sur le plan de l'étanchéité, un système équivalent au joint automatique Bridgman.

Cet ensemble nous a permis d'effectuer des expériences sur des matériaux très fragiles, lesquelles auraient été exclues avec des milieux transmetteurs de pression solides. Ainsi nous avons pu réaliser des mesures résistives et d'effet tunnel sur des couches minces AsGa-Pb et AsGa-Bi. Nous avons notamment mis en évidence la phase supraconductrice du bismuth, située au-dessus de 27,5 kbar, et ceci par effet tunnel.

Cet appareil peut être utilisé pour effectuer des mesures physiques, sans champ magnétique : conductivités, calorimétrie sous pression, ultrasons... sur tous matériaux — massifs ou poudres — aussi fragiles soient-ils — monocristaux couches minces...

Toutes les pièces de cet ensemble sont réalisées avec des matériaux classiques, d'approvisionnement facile, ne nécessitant pas d'usinage très particulier, sinon une finition très soignée pour les parties soumises à la pression. Les seuls éléments à changer après chaque cycle d'expériences sont la cellule téflon, les différents joints côté haute pression, et à un degré moindre, l'obturateur haute pression, ainsi que les pièces de support en carbure de tungstène.

Actuellement cet ensemble a subi une vingtaine de cycles en pression à 30 kbar, dont quelques-uns entre 30 et 40 kbar. La descente en température ne nous a pas posé de problèmes particuliers.

Remerciements. — Les auteurs tiennent à remercier Mr. G. Cagnon pour les mesures physiques effectuées sur le téflon, ainsi que Mr. Cooper pour sa contribution aux expériences de physique réalisées avec l'appareillage, notamment en ce qui concerne les mesures sur l'ytterbium.

Bibliographie

- [1] BRIDGMAN, P. W., *The Physics of High Pressure* (G. Bell et Sons, London) 1958.
- [2] Laboratoires de la General Electric à Schenectady.
- [3] BENOIT, A., DELAPLACE, R., FLOUQUET, J., *Phys. Rev. Lett.* **32** (1974) 222.
- [4] GUETTIN, SCHREDER, *Phys. Rev.* **B 5** (1972) 3979.
- [5] DRICKAMER *et al.*, *Rev. Sci. Instrum.* **35** (1964) 29.
- [6] BRIDGMAN, P. W., *Proc. Am. Acad. Arts. Sci.* **76** (1964) 55.
- [7] EICHLER and WITTIG, *Z. Angew. Phys.* **25** (1968) 319.
- [8] HALL, H. T., *Rev. Sci. Instrum.* **31** (1960) 125.
- [9] BLOCK, S. and PIERMARIMI, Europhysics Conference Abstracts, Vol. 1 A, 67-70.
- SYASSEM, K. and HOLZAPFEL, W. B., Europhysics Conference Abstracts, Vol. 1 A, 75-76.
- [10] HALL, H. T., *Rev. Sci. Instrum.* **29** (1958) 267.
- [11] FRANCILLON, M., JEROME, D., *Solid State Commun.* **12** (1973) 523.
- [12] LANGER, D. W., *J. Phys. & Chem. Solids* **21** (1961) 122.
- [13] JAYARAMAN *et al.*, *Rev. Sci. Instrum.* **38** (1967) 44.
- [14] MALFAIT, G., JÉROME, D., *Rev. Phys. Appl.* **4** (1969) 467.
- [15] HAMANN et TEPLITZKY, *Discuss. Faraday Soc.* **22** (1956) 119.
- [16] GELLER, MC WHAN and HULL Jr, *Science* **140** (1963) 62.
- [17] KANG SOOKIM, *Rev. Sci. Instrum.* **41** (1970) 1102.
- [18] Le principe de ces nouveaux passages électriques nous a été suggéré par M. GRYNBERG de Varsovie. Cependant, la réalisation présentée dans ce travail est le résultat des recherches effectuées au Laboratoire d'Orsay.
- [19] Communication à paraître.
- [20] MC WHAN, D. B., RICE, T. M. and SCHMIDT, P. H., *Phys. Rev.* **177** (1969) 1063.