

APPAREIL DE PRESSION HYDROSTATIQUE POUR MESURES ÉLECTRIQUES JUSQU'À 17 KBAR A TRÈS BASSE TEMPÉRATURE (*)

G. DELPLANQUE, G. MALFAIT, M. RIEUX et D. JÉROME

Laboratoire de Physique des Solides (**),
Faculté des Sciences, 91, Orsay

(Reçu le 12 mai 1970)

Résumé. — Nous décrivons un ensemble : cellule de pression hydrostatique, cryostat permettant de faire des mesures de résistivité entre 1,2 °K et 300 °K jusqu'à 17 kbar, et d'effet Hall jusqu'à 16 kbar à la température de l'hélium liquide.

Le milieu transmetteur de pression est habituellement de l'isopentane, mais on peut aussi utiliser l'hélium. Cet ensemble est d'une utilisation pratique et sûre. Il a permis d'effectuer une étude de la transition métal-isolant dans l'Ytterbium sous pression.

Abstract. — We shall describe an equipment : pressure vessel-cryostat for resistivity measurements under hydrostatic pressure up to 17 kbar. between 1.2 and 300 °K and Hall effect measurements at liquid helium temperature.

The pressure medium is usually isopentane. We could as well work with helium. This very convenient equipment has been used for the study of the metal to insulator transition in Yb under pressure.

I. Introduction. — L'objet de cet article est de décrire un ensemble cryostat-enceinte de pression qui a été construit en vue de servir à des mesures sous pression hydrostatique jusqu'à 17 kbar dans un large domaine de températures (1,2 °K-300 °K). Les expériences possibles avec cet ensemble sont : des mesures de résistivité sur des métaux ou des mesures magnétiques telles que effet Hall, magnétorésistance, effet de Haas van Alphen et résonance magnétique jusqu'à 20 kgauss.

La seule manière d'obtenir une pression hydrostatique sur l'échantillon étudié consiste à placer cet échantillon dans une enceinte de pression. Un fluide comprimé contenu par l'enceinte transmet la pression à l'échantillon.

Les fluides couramment utilisés sont soit des liquides (alcools ou isopentane), soit des gaz comme l'hélium ou l'argon [1]. La pression de fusion de l'isopentane à 300 °K est comprise entre 20 et 30 kbar suivant les auteurs. Par contre l'hélium dans les mêmes conditions ne se solidifie qu'à des pressions supérieures à 100 kbar.

Dans l'appareil que nous décrivons, le fluide est comprimé dans l'enceinte de pression à la température ambiante. L'enceinte est ensuite refroidie provoquant la solidification du fluide comprimé. Le principe de notre appareillage est très proche de celui utilisé par

Langer et Warschauer [2] ou Goree et Scott [3]. Le fluide liquide ou gaz est comprimé jusqu'à 17 kbar dans un multiplicateur de pression relié à l'enceinte de mesure par l'intermédiaire d'un capillaire haute pression flexible.

Il y a d'autres méthodes permettant d'obtenir des hautes pressions hydrostatiques à basse température. Citons la méthode de « clamp » où le fluide est comprimé directement dans l'enceinte à température ambiante à l'aide d'un dispositif piston-cylindre. Le piston pénétrant dans l'enceinte est alors bloqué. L'enceinte est séparée de la presse et placée dans un cryostat à basse température [4]. Les avantages de la méthode du multiplicateur par rapport à celle du « clamp » sont les deux genres : d'une part on évite la manipulation dangereuse d'enceintes de pression, d'autre part la méthode du multiplicateur permet de travailler avec de l'hélium gazeux comme transmetteur de pression. A titre indicatif, la pression de solidification de l'hélium à 77 °K est de 14,1 kbar [5]. Le domaine des pressions rigoureusement hydrostatiques est donc déterminé par la courbe de fusion de l'hélium [6].

Lors du refroidissement de l'enceinte de pression, la solidification peut être effectuée soit à volume constant, soit à pression constante si on prend beaucoup de précautions afin que le fluide comprimé se solidifie d'abord dans la cellule et non dans le capillaire [7] [8]. Dans le dispositif que nous décrivons, nous n'avons pas pris jusqu'à présent de précautions spéciales et la solidification s'effectue à volume constant. Nous avons utilisé comme milieu transmetteur soit de l'isopentane, soit de l'hélium.

(*) Ce développement technique a été rendu possible grâce au contrat D. R. M. E. 403-67.

(**) Laboratoire associé au C. N. R. S.

Dans la partie II nous décrivons une enceinte de pression non magnétique pour 17 kbar, dans la partie III l'ensemble cryogénique permettant de travailler à température stabilisée entre 4,2 °K et 40 °K. Nous décrivons enfin dans la partie IV le principe de mesures de résistivité et d'effet Hall sous pression.

II. Enceinte de pression. — Dans un précédent article [9], nous avons décrit l'appareil de pression hydrostatique pour travailler en pression jusqu'à 17 kbar et en température de 300 °K à 2 °K. Une bombe de pression en acier permettait des mesures de résistivité. Dans le but d'effectuer des mesures en champ magnétique nous avons mis au point une enceinte de pression non magnétique en cuivre-béryllium ⁽¹⁾ avec laquelle nous avons pu atteindre des pressions supérieures à 16 kbar.

II.1 ENCEINTE DE PRESSION NON MAGNÉTIQUE. — La figure (1a) décrit l'enceinte de pression, le milieu transmetteur utilisé étant de l'isopentane. Le cuivre au béryllium est traité thermiquement à 140 kg/mm²

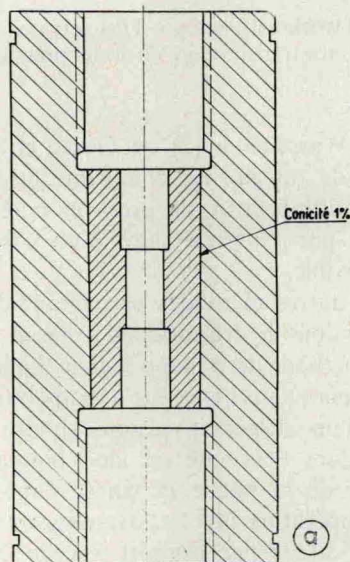


FIG. 1a. — Enceinte de pression non magnétique.

au maximum. Cette caractéristique mécanique et des raisons de sécurité ont conduit à choisir une enceinte à 2 enveloppes frettées. L'âme a été traitée thermiquement à 140 kg/mm² et la frette à 130 kg/mm². Pour déterminer le rayon de l'âme et le serrage, nous avons utilisé les diagrammes de frettage de Huddleston [10]. Pour un diamètre intérieur de chambre de 14 mm, nous avons obtenu un diamètre de l'âme de 41 mm et choisi un serrage de 3/10 mm sur le diamètre. La chambre de mesure a ainsi un volume de 4,5 cm³. Pour le frettage, afin d'éviter de

(1) Berylco 25, de Beryllium Corporation.

chauffer trop fortement la pièce extérieure, l'âme et l'alésage de la frette ont été usinés avec une conicité de 1 %.

Cette enceinte est restée plusieurs fois en pression au-dessus de 15 kbar pendant plusieurs jours et nous n'avons pas noté de déformation permanente des enveloppes.

II.2 PASSAGES ÉLECTRIQUES. — Lors des premières expériences, les obturateurs et passages électriques en cuivre-béryllium étaient semblables à ceux décrits dans [9]. Cependant nous avons constaté que l'obturateur des 4 passages électriques sous fortes pressions se creusait au niveau des joints au droit de chaque passage et gonflait d'environ 4 à 5/10 mm dans la partie cylindrique située derrière les joints. Ces déformations étaient à l'origine de fuites brusques lors des montées en pression au-dessus de 13 kbar et des difficultés pour extraire l'obturateur de l'enceinte après montée en pression. Nous avons attribué ces déformations à l'affaiblissement provoqué par les 4 passages électriques. Nous avons préféré une nouvelle disposition : (Fig. 1b) les cônes des passages sont inclinés de 20° sur

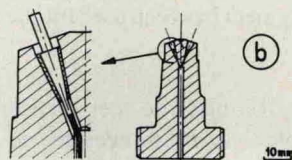


FIG. 1b. — Disposition des passages électriques dans l'obturateur.

l'axe de l'obturateur et les fils électriques passent ainsi dans un trou unique central de 2 mm de diamètre. D'autre part cette disposition permet d'augmenter le nombre des passages sans affaiblir notablement la tête de l'obturateur. Nous avons pu conserver pendant plusieurs jours une pression supérieure à 16 kbar avec ce type d'obturateur sans noter de déformation permanente importante.

En conclusion, avec cet équipement nous avons pu effectuer de nombreuses expériences d'effet Hall et de magnétorésistance en pression et à froid et nous avons obtenu des performances équivalentes à celles réalisées avec des enceintes en acier sans noter de déformations importantes aux pressions les plus élevées.

III. Cryogénie. — Nous décrivons un cryostat à température réglable entre 4,2 °K et 50 °K fonctionnant avec l'enthalpie de l'hélium pour des mesures de résistivité dans l'enceinte de pression. La température de l'enceinte est réglable par un dispositif de régulation automatique commandé à partir d'une diode en arsénure de gallium utilisée comme capteur. La température est stabilisée à mieux que 0,1 °K près. La consommation d'hélium liquide est de 0,3 à 0,55 l par heure en régime permanent.

Nous décrivons également sommairement un cryostat avec bobine supraconductrice de 2 tesla utilisé pour des mesures d'effet Hall et de magnétorésistance à 4,2 °K.

III.1 CRYOSTAT A TEMPÉRATURE RÉGLABLE. —

III.1.a *Principe.* — Pour pouvoir réguler en température, l'enceinte de pression est placée dans un courant d'hélium gazeux provenant du bain cryogénique que l'on fait évaporer par apport Joule de 90 à 250 mW et on chauffe le haut de l'enceinte à l'aide d'une résistance pour obtenir la température désirée (Fig. 2).

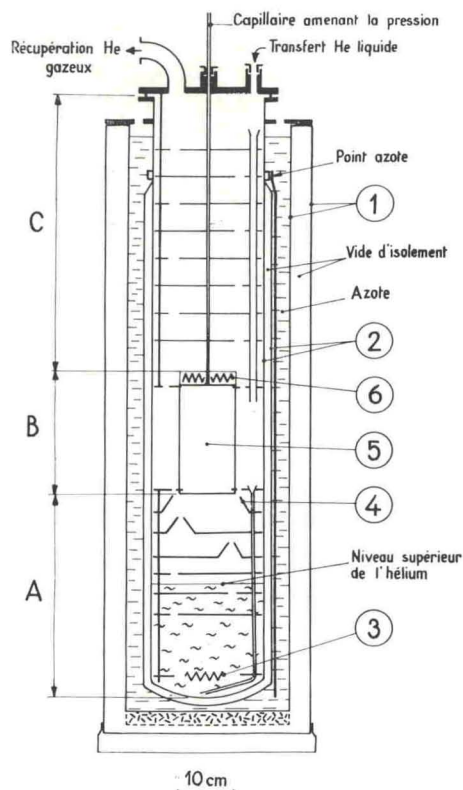


FIG. 2. — Cryostat à température variable.

- ① Vase azote. ② Vase hélium. ③ Résistance d'évaporation.
④ Collecteur en cuivre. ⑤ Enceinte de pression. ⑥ Résistance de chauffage de l'enceinte.

Les pertes spontanées du cryostat correspondent environ à 150 mW (0,2 l d'hélium liquide par heure), la consommation d'hélium pour la régulation varie de 0,1 à 0,35 l d'hélium liquide par heure selon la température réglée. La puissance dissipée pour le chauffage de l'enceinte est fournie par un amplificateur de puissance commandé à partir d'un bloc de régulation. Cette puissance peut être au maximum de 22 watts. Pendant la régulation, elle peut varier de zéro à cette valeur, de façon continue. L'enceinte de pression doit être découplée au maximum du bain d'hélium liquide et la résistance de chauffage est le plus possible en contact thermique avec l'enceinte et non avec le gaz, afin d'éviter des convections entre l'enceinte et le bain cryogénique. Ce principe de régulation a déjà été utilisé dans d'autres montages, notamment pour les

mesures de résistivités à basse température, par Lauriat et Péro [11].

III.1.b *Réalisation.* — Le vase à azote en acier inoxydable ① a une hauteur de 1 200 mm et un diamètre intérieur de 320 mm. Le vase à hélium ② a une hauteur utile de 1 100 mm et un diamètre intérieur de 200 mm.

L'intérieur du cryostat comprend trois parties :

— A la partie inférieure du vase hélium A, se trouve l'étage d'évaporation de l'hélium qui va constituer la source froide pour le refroidissement et la régulation de température de l'enceinte de pression. Il comporte une résistance d'évaporation de 100 Ω ③ plongeant dans l'hélium liquide. Au-dessus du niveau maximum d'hélium liquide (6 l), se situe une série d'écrans en acier inoxydable poli, qui assure le découplage entre le bain et l'enceinte de pression. Certains de ces écrans présentent des passages coniques pour éviter les convections dans le gaz. A la partie supérieure de l'étage se trouve un collecteur conique en cuivre ④ qui guide le courant d'hélium gazeux à la partie inférieure de l'enceinte.

— A l'étage intermédiaire B se situe l'enceinte de pression ⑤ qui contient l'échantillon et la source chaude pour la régulation en température, qui est constituée par une résistance de 12 Ω ⑥ en fil de constantan bobinée dans un boîtier circulaire et mise en contact thermique avec l'enceinte.

— La partie C est constituée par une série d'écrans en acier inoxydable poli, qui a pour but de réduire les pertes par radiation et convection. Ces écrans sont fixés sur 3 tubes minces en acier inoxydable de diamètre 6 mm qui servent également à soutenir l'enceinte de pression.

III.1.c *Mesure de la température.* — La température de l'extérieur de l'enceinte est mesurée à l'aide d'une diode à arsénure de gallium (2) dont l'avantage est d'avoir un large domaine d'utilisation. Pour un courant de 1 mA, la variation de résistance par degré est de 2 ohms à 300 °K, de 0,5 ohm à 4 °K avec un minimum de 0,4 ohm entre 10 et 30 °K pour une valeur d'environ 1 000 ohms. La mesure est effectuée par la méthode à 4 points avec un courant constant de 1 mA.

III.1.d *Fonctionnement et régulation de température.* — L'évaporation spontanée de l'hélium pendant le transfert permet d'atteindre la température de 4,2 °K au niveau de l'enceinte. Pour conserver cette température pendant un temps assez long après le transfert, il faut faire évaporer de l'hélium à l'aide de la résistance d'évaporation par apport Joule d'environ

(2) Diode AsGa Phylatron Corporation.

100 mwatts. Le refroidissement du cryostat et de l'enceinte depuis la température de l'azote liquide consomme environ 5 l d'hélium liquide.

La régulation de la température est obtenue par le chauffage de l'enceinte par l'intermédiaire d'un dispositif commandé par l'écart entre une tension de référence et la tension du capteur de température.

Le dispositif de régulation comprend (Fig. 3) :

- un organe de mesure : diode AsGa,
- un organe de référence : potentiomètre,
- un organe de comparaison : enregistreur ⁽³⁾,
- un organe de pondération et d'amplification qui agit directement sur la température de l'enceinte.

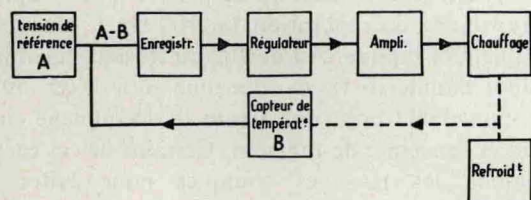


FIG. 3. — Schéma du dispositif de régulation de température.

Pour régler l'enceinte à la température désirée, au-dessus de 4,2 °K, on affiche la tension de référence correspondant pour la diode à cette température. Cette tension est mise en opposition avec celle délivrée par la diode et la différence est envoyée sur l'enregistreur où on peut suivre directement la qualité de la régulation (Fig. 4). Mécaniquement lié à l'index de mesure de l'enregistreur, le curseur d'un potentiomètre envoie au régulateur les informations sur le décalage de la mesure par rapport au zéro et sur la vitesse à laquelle le décalage évolue ⁽⁴⁾.

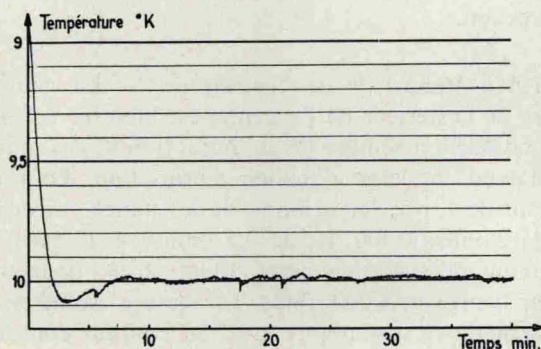


FIG. 4. — Exemple d'enregistrement de température régulée.

La figure 4 montre un enregistrement de température à 10 °K. L'optimisation des réglages varie avec la température et est plus délicate vers les hautes températures (au-dessus de 30 °K) notamment à cause de

l'accroissement de chaleur spécifique de l'acier de l'enceinte qui augmente la constante de temps entre la résistance de chauffage et le capteur de température. La qualité de la régulation lue directement sur l'enregistreur montre que pour des réglages optimisés la température ne varie pas plus de 0,1 °K sur la partie extérieure de l'enceinte.

III.2 CRYOSTAT AVEC BOBINE SUPRACONDUCTRICE.

— Dans le même ensemble de vases à azote et à hélium que dans le cryostat à température variable, nous avons réalisé un cryostat pour effectuer des mesures sous pression avec un champ magnétique. La bobine supraconductrice et l'enceinte de pression baignent dans le bain d'hélium liquide. Ce dispositif est utilisé pour faire des mesures d'effet Hall et de magnétorésistance sur des échantillons soumis à une pression hydrostatique allant jusqu'à 16 kbar.

La figure 5 donne la disposition à l'intérieur du cryostat de la bobine et de l'enceinte de pression décrite dans cet article. La bobine supraconductrice est en fil de Niobium-Titane coétrivé dans une gaine de cuivre ⁽⁵⁾, le champ magnétique induit est de 2 tesla avec une homogénéité de 10^{-5} dans un volume de 2 cm³ au centre de la bobine. Elle a une longueur de 350 mm et un diamètre intérieur de 150 mm. Le courant est de 32 A pour le champ maximum. Les descentes de courant sont constituées de deux tresses de cuivre raccordées à 30 cm au-dessus de la bobine à des tresses

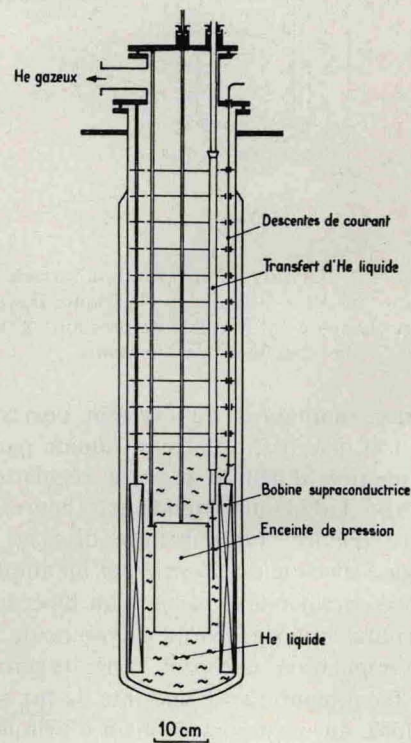


FIG. 5. — Cryostat à 4 °K pour mesures magnétiques.

⁽³⁾ Enregistreur MECI, gamme 1 mV à 25 mV à zéro central.

⁽⁴⁾ Régulation de température MECI-CAT, licence Leeds-Northrup.

⁽⁵⁾ Fabriqué par la Compagnie Thomson-Houston.

constituées de fils de cuivre et de fils supraconducteurs liés avec de l'indium. Le raccordement sur la bobine est également réalisé avec de la soudure d'indium.

La consommation pour le refroidissement de la bobine et de l'enceinte de 77 °K à 4,2 °K est de 8 l d'hélium liquide. La consommation du cryostat avec le courant maximum parcourant la bobine est de 0,4 l d'hélium liquide par heure soit 300 mwatts.

IV. Mesures électriques. — La chambre de mesure de l'enceinte de pression a pour dimensions 13 mm de diamètre et 30 mm de longueur environ. De plus pour les mesures d'effet Hall, le champ magnétique est perpendiculaire à l'échantillon, ce qui conditionne les dimensions très réduites et la forme de ce dernier qui doit s'inscrire dans une circonférence de 12 mm de diamètre maximum. Sur l'échantillon (Fig. 6) sont

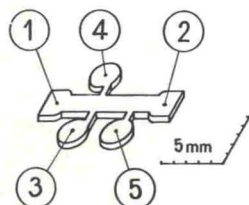


FIG. 6a. — Échantillon.

① et ② Prises de courant. ③ et ④ Voltage Hall. ③ et ⑤ Voltage résistif.

disposées des prises pour le voltage résistif et le voltage Hall sur lesquelles sont soudés électriquement par point des fils de cuivre de 0,2 mm de diamètre. Les prises ③ et ④ servant à mesurer le voltage Hall sont autant que possible perpendiculaires à l'axe de l'échantillon afin d'annuler le signal résistif. La méthode de découpage se fait en une seule opération par électro-érosion. L'échantillon est maintenu dans la chambre par un support en téflon fixé sur un des obturateurs (Fig. 6).

IV.1 MESURES DE RÉSISTIVITÉ. — La résistivité est mesurée par la méthode à 4 points en courant continu ou en courant alternatif basse fréquence (30 Hz).

En courant continu, le potentiel est mesuré par une méthode de zéro à l'aide d'un pont potentiométrique Tinsley (0,1 V à 0,1 μV en 5 décades). Le courant est mesuré par le même appareil et une résistance étalon de 0,1 Ω.

Le courant alternatif est délivré par le générateur d'oscillations d'un détecteur synchrone (PAR 122) travaillant en mode interne. Ce courant commande un amplificateur qui sort un courant de 100 à 300 mA crête à crête qui est envoyé à l'échantillon (Fig. 7). La mesure du potentiel est faite par le détecteur synchrone relié à l'échantillon par l'intermédiaire d'un transformateur (PAR AM 1) dont la fonction est triple :

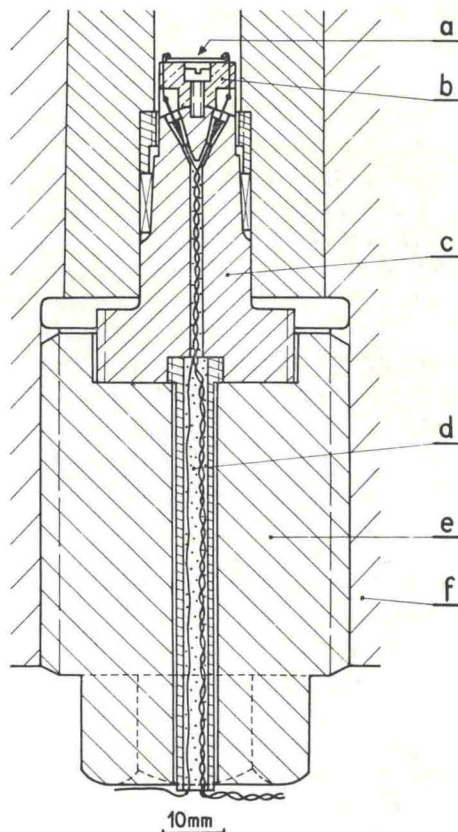


FIG. 6b. — Montage de l'échantillon dans l'enceinte. (a) Échantillon. (b) Porte-échantillon. (c) Obturateur. (d) Immobilisation des fils par bourrage. (e) Vis de serrage. (f) Enceinte de pression.

- isoler du circuit mesure la masse correspondant à l'entrée du signal de la détection synchrone ;
- multiplier la tension reçue de l'échantillon dans un rapport d'environ 100 ;
- ramener l'impédance de source à une valeur proche de l'impédance optimale pour le bruit à la fréquence considérée.

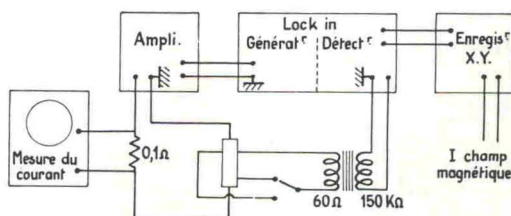


FIG. 7. — Schéma de la mesure en courant alternatif.

Il faut noter que les conducteurs du circuit de mesure situés en amont du transformateur (notamment les descentes dans le cryostat) doivent avoir une résistance assez faible devant celle du primaire du transformateur (60 Ω) pour conserver une valeur maximale au signal.

Dans cette méthode, la calibration est effectuée par comparaison avec les valeurs de résistance mesurées en courant continu. L'intérêt du courant alternatif est

de pouvoir enregistrer les variations de résistance de l'échantillon avec le champ magnétique.

IV.2 MESURE DU VOLTAGE HALL. — La mesure de l'effet Hall s'effectue en courant alternatif selon le dispositif décrit ci-dessus pour la résistivité. La difficulté de cette mesure sur les métaux réside dans le fait que l'effet Hall est très faible (10^{-9} m³/cb environ dans l'Ytterbium) et le signal peut si on ne prend pas de précautions devenir inférieur aux signaux parasites. Ces derniers déphasés d'environ 90° par rapport au signal Hall sont dus aux inductions mutuelles entre le circuit courant et le circuit potentiel et aux vibrations des fils de courant. Ils peuvent être éliminés en éloignant le plus possible les 2 circuits, en torsadant les deux conducteurs d'un même circuit et en immobilisant les conducteurs du circuit courant dans la zone du champ magnétique. Le bruit aléatoire qui se superpose au signal est d'environ 20 nanovolts et vient pratiquement du transformateur.

V. Conclusion. — Nous avons décrit un équipement pour mesures électriques et magnétiques sous pression hydrostatique. Cet appareil a permis de faire l'étude de la transition métal-isolant dans l'Ytterbium et les alliages Yb-Ba [12, 13]. Des pressions de 17 kbar ont été atteintes et maintenues sans fuites pendant plusieurs jours. Pour les expériences sur l'Ytterbium, nous avons utilisé l'isopentane comme transmetteur de pression. Le refroidissement de l'enceinte à volume constant conduit à une perte de pression de 4 kbar à la

solidification estimée par une jauge située dans l'enceinte de pression [14]. Malgré tout, en procédant à un refroidissement suffisamment lent (10 °K/heure), nous n'avons pas remarqué d'écart à l'hydrostaticité dans les mesures à basses températures. Nous avons pu travailler avec de l'hélium comme transmetteur de pression seulement jusqu'à 11 kbar pour des raisons de sécurité et changer la pression à la température de l'azote liquide. Le domaine de travail avec l'hélium comme transmetteur sera étendu très prochainement jusqu'à 17 kbar.

Nous avons décrit un ensemble cryogénique pour mesures de résistivités dont le principe de fonctionnement est basé sur l'évaporation d'un bain d'hélium liquide (source froide) et l'échauffement d'une résistance au sommet de l'enceinte de pression (source chaude). Des températures entre 4,2 °K et 40 °K stabilisées à mieux que 0,1 °K près ont été atteintes.

Nous avons donné une description détaillée du montage des échantillons dans l'enceinte de pression ainsi que des obturateurs utilisés pour les mesures d'effet Hall sur des métaux.

L'utilisation de l'appareillage de mesures magnétiques sous pression sera étendue prochainement à l'effet de Haas van Alphen et à la résonance magnétique nucléaire.

Remerciements. — Nous tenons à remercier particulièrement D. Lefur pour l'aide aimable qu'il a toujours voulu nous accorder et l'intérêt constant qu'il a porté à cette réalisation.

Bibliographie

- [1] BRADLEY (C. C.), High pressure methods in Solid State Research Butterworths, London, 1969.
- [2] LANGER (D.) et WARSCHAUER (D. M.), *Rev. Sci. Instrum.*, 1961, **32**, 32.
- [3] GORÉE (W. S.) et SCOTT (T. A.), *J. Phys. Chem. Solids*, 1966, **27**, 835.
- [4] ITSKEVICH (E. S.), VORONOVSKII (A. N.), GAVRILOV (A. F.) et SUKHAPAROV (V. A.), *Cryogenics*, 1967.
- [5] LANGER (D. W.), *J. Phys. Chem. Solids*, 1961, **21**, 122.
- [6] DUGDALE (J. S.), *Suppl. Nuovo Cimento* 1958. Vol. IX, Série X, 27.
- [7] O'SULLIVAN (W. J.) et SCHIRBER (J. E.), *Phys. Rev.*, 1966, **151**, 484.
- [8] SCHIRBER (J. E.), *Physics of Solids at high pressures*. Ed. Tomizuka C. T. Emrick R. M., Acad. Press. New York, 1965.
- [9] MALFAIT (G.) et JEROME (D.), *Rev. Phys. Appl.*, 1969, **4**, 467.
- [10] HUDDLESTON (R. L.), ASME 1964, Symposium on high pressure technology.
- [11] LAURIAT (J. P.) et PERIO (P.), *Rev. Phys. Appl.*, 1968, **3**, 185.
- [12] JÉROME (D.) et RIEUX (M.), *Compte rendu de la conférence de Physique du Solide sous pression, Grenoble 1969 C. N. R. S.* RIEUX (M.) et JÉROME (D.), à paraître 1970.
- [13] JULLIEN (R.) et JÉROME (D.), *J. Phys. Chem. Solids*, à paraître.
- [14] RIEUX (M.), Thèse de 3^e Cycle, Orsay 1970.