

НИЗКОТЕМПЕРАТУРНЫЙ ЕМКОСТНЫЙ ДИЛАТОМЕТР

© 2011 г. А. Н. Утюж, В. Н. Красноярский

*Институт физики высоких давлений имени Л.Ф. Верещагина РАН
Россия, 142190, Троицк Московской области*

Поступила в редакцию 27.04.2011 г.

Описан dilatometer с емкостным датчиком перемещений, предназначенный для измерения теплового расширения твердых образцов в диапазоне 4–300 К. Датчик прибора пригоден для измерений при высоких давлениях. Датчик был установлен внутри промышленной вставки в транспортный криостат VTI SIV с регулируемой прокачкой жидкого гелия и успешно использован с простой коммерческой системой регулирования температуры. Dilatometer позволяет исследовать тепловое расширение образцов с чувствительностью $\sim 1.4 \text{ \AA}$ при последовательных циклах охлаждения и отогрева со скоростью $\sim 10^{-3} \text{ К/мин}$. Приведены результаты измерений теплового расширения образца CoS_2 вблизи точки фазового перехода.

ВВЕДЕНИЕ

По результатам измерений теплового расширения твердых тел можно судить об электронных и фононных спектрах металлов и диэлектриков, о поведении теплоемкости образцов. Регистрация фазовых переходов dilatometricким методом позволяет определить тип перехода, понять характер превращений, происходящих в исследуемых материалах.

Как правило, образцы новых материалов имеют характерный размер $\sim 1 \text{ мм}$ и менее, что накладывает определенные ограничения на конструкцию dilatometerов и используемых в них датчиков перемещений. Для изучения явлений, происходящих при низких температурах, требуются приборы с чувствительностью порядка 1 \AA . Dilatometerы, использующие емкостные датчики, имеют ряд преимуществ. Выпускаемые промышленностью прецизионные емкостные мосты [1] имеют чувствительность 10^{-7} пФ , что позволяет при использовании малогабаритных емкостных датчиков перемещения достигать чувствительности 0.1 \AA [2]. В емкостном датчике удлинение образца приводит к изменению зазора d между пластинами конденсатора. Емкость плоского конденсатора

$$C = \varepsilon \varepsilon_0 S/d,$$

где S – площадь пластин; ε – относительная диэлектрическая проницаемость среды в зазоре; $\varepsilon_0 = 8.854 \cdot 10^{-12} \text{ Ф/м}$ – электрическая постоянная. На изменение зазора d влияют как тепловое расширение образца, так и расширение самого датчика при изменении температуры, что следует учитывать при разработке конструкций dilatometerов. Основной круг проблем емкостной dilatometricии рассматривается в работах [2–4].

ЕМКОСТНЫЙ ДАТЧИК ДИЛАТОМЕТРА

Конструкция датчика, используемого в наших исследованиях, близка к описанной в работе [2]. Она была доработана для обеспечения возможности проведения измерений в атмосфере газообразного гелия при повышенных давлениях, так что результаты измерений емкости необходимо нормировать для учета изменения диэлектрической проницаемости гелия под давлением. Схема датчика представлена на рис. 1. При изменении длины образца 3 перемещается подвижная пластина конденсатора 2, которая закреплена на кольцевой мембране 4, изготовленной из бронзы БрБ2. Мембрана центрирует положение пластины и работает как пружина для обеспечения надежного контакта пластины с образцом.

Выбор материалов для изготовления емкостного датчика определяется рядом требований: высокая теплопроводность, малая чувствительность к магнитному полю, малый температурный коэффициент расширения, коррозионная стойкость. Наиболее часто предпочтение отдается либо чистой меди, либо плавленому кварцу с его малым коэффициентом расширения. Тепловое расширение материала, из которого изготовлен dilatometricкий датчик, должно быть известно с высокой точностью, чтобы правильно учитывать собственный вклад датчика в результаты измерений.

В данной работе датчик выполнен из меди, поскольку она обладает высокой теплопроводностью, мало чувствительна к магнитному полю, а данные по ее линейному расширению приведены в [5]. К достоинствам используемой конструкции относятся возможность менять образец без разборки датчика, использовать образцы неправильной формы, сильно различающиеся по размерам,

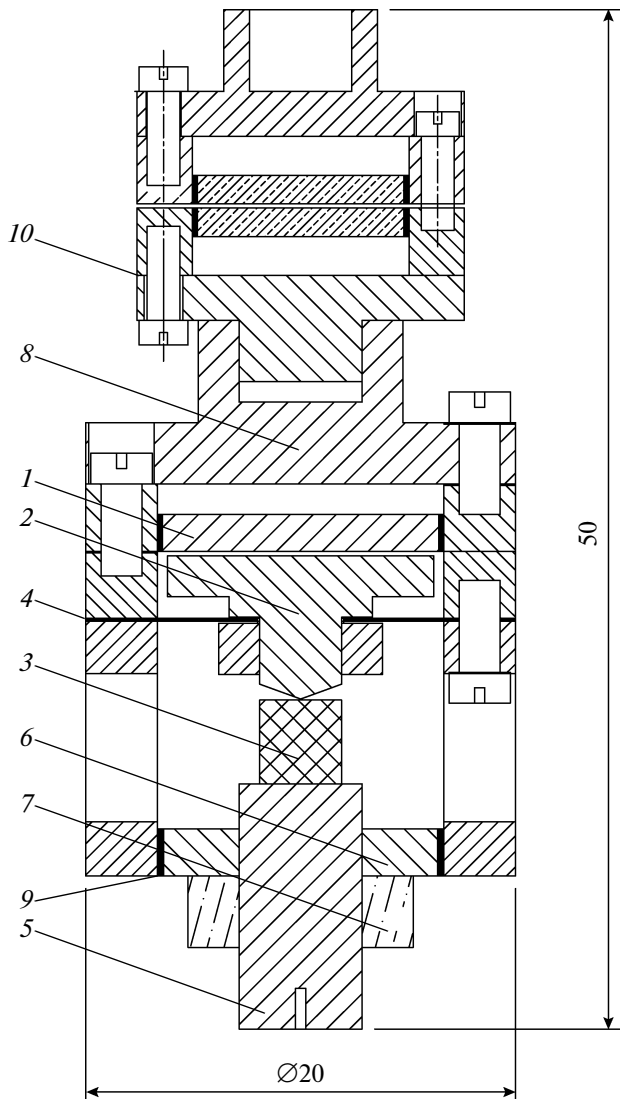


Рис. 1. Схема емкостного датчика dilatометра. 1 – неподвижная пластина плоского конденсатора; 2 – подвижная пластина конденсатора; 3 – образец; 4 – кольцевая мембрана (пружина); 5 – винт с опорной поверхностью для размещения образца; 6 – нижняя пластина датчика; 7 – контргайка; 8 – верхняя крышка датчика; 9 – эпоксидная смола Stycast; 10 – опорный конденсатор, предназначенный для нормирования измерений, выполненных под давлением.

а также проводить измерения в магнитном поле в широком диапазоне температур.

Все медные части после механической обработки были очищены в 5%-ном растворе азотной кислоты и отожжены в вакууме при 300°C в течение 4 ч для снятия остаточных напряжений. Для обеспечения электрической изоляции деталей пластины 1 и 6 датчика клеены эпоксидной смолой Stycast, а кольцевая мембрана изолирована от подвижной пластины конденсатора 2 прокладками из слюды. Наличие этих материалов, коэффициент теплового расширения которых отличен от

теплового расширения меди, влияет на показания датчика. Для учета этого влияния вначале проводят измерения теплового расширения образца, изготовленного из основного материала датчика (из меди). Получаемую таким образом поправку вводят при обработке результатов основных измерений.

Пластины плоского конденсатора датчика соединены с емкостным мостом Andeen-Hagerling (модель АН 2550а) [1] двумя коаксиальными кабелями по трехэлектродной схеме.

Если у образца есть две параллельные поверхности, то его можно поместить в центр площадки опорного винта (5 на рис. 1) и вращать винт до тех пор, пока образец не упрется в скругленный кончик нижней пластины конденсатора 2. Затем опорный винт фиксируют контргайкой 7. Например, при исследовании теплового расширения кристалла дигидрофосфата калия KH_2PO_4 (KDP) образец был приготовлен в форме параллелепипеда высотой 5.65 мм.

Если одна поверхность образца плоская, то, придерживая образец пинцетом и вращая винт, обычно удается отыскать на противоположной стороне образца плоский участок, в который можно упереться скругленным кончиком нижней пластины конденсатора 2. Так, например, мы установили образец CoS_2 высотой 1.73 мм. Обычно для устойчивости перед началом измерений мы поджимали пластины датчика, так чтобы начальная емкость датчика была примерно на 4 пФ выше емкости при нулевом усилии.

Высоту исследуемого образца при нормальных условиях L_0 измеряли с помощью микрометра, микрометрического индикатора и микроскопа Olympus SZX.

ИЗМЕРЕНИЕ И РЕГУЛИРОВАНИЕ ТЕМПЕРАТУРЫ

Чтобы обеспечить высокую чувствительность dilatометра, емкостный датчик необходимо помещать в “безградиентную камеру” [4, 6], окруженную несколькими экранами, температура которых стабилизируется независимо. Это позволяет снизить градиент температуры вдоль датчика до 3–5 мК. Однако построение таких систем представляет собой серьезную методическую задачу.

В данной работе для задания температуры датчика мы использовали промышленную проточную вставку VTI SIV [7] в транспортный криостат. Температуру в диапазоне 4–300 К задавали, регулируя скорость прокачки жидкого гелия через теплообменник вставки, снабженный электрическим нагревателем, работой которого управляли с помощью контроллера ИТС 503. Температуру вставки измеряли калиброванным термометром Setpoint 1050-SD. Емкостный датчик был закреплен на

медном холодном пальце этой вставки в вакуумируемом стакане.

Емкость датчика dilatометра может изменяться под действием градиента температуры. Влияние градиента температуры особенно сильно проявляется при быстром охлаждении или отогреве датчика. Градиент температуры на датчике меняет знак при отогреве или охлаждении, так что измеренные значения емкости отклоняются в противоположные стороны от зависимости $C(T)$, полученной при очень медленном изменении температуры.

Для измерений градиента температуры на датчике dilatометра использовали два калиброванных термометра Cernox Resistor CX 1050 SD-HT, приклеенных клеем БФ-2 к верхней крышке δ и винту 5 датчика (см. рис.1), показания которых регистрировали контроллером Lakeshore 340. Для выравнивания температурного поля датчик dilatометра был окружен дополнительным медным стаканом, закрепленным на теплообменнике вставки VTI SIV на уровне размещения в ней собственного термометра вставки, включенного в цепь автоматического регулирования температуры. На теплообменник было намотано несколько слоев медной ленты толщиной 0.5 и шириной 30 мм. Медный стакан с усилием надевали на эту ленту, что обеспечивало надежный тепловой контакт и механическое крепление.

Обычно вставка VTI SIV устанавливается в криостате с жидким гелием и предназначена для получения температур 1.5–300 К. Однако при $T > 100$ К расход жидкого гелия довольно велик, поэтому для проведения измерений в интервале температур 80–300 К мы устанавливали эту вставку в криостат с жидким азотом.

ИССЛЕДОВАНИЯ ФАЗОВЫХ ПЕРЕХОДОВ

Методику исследований рассмотрим на примере dilatометрических измерений, проведенных впервые на монокристалле CoS_2 [8]. Высота образца $L_0 = L(293 \text{ К})$ равнялась 1.73 мм.

Внутреннюю полость вставки VTI SIV откачивали до 10^{-5} Торр, dilatометр был окружен дополнительным медным стаканом, измерения в интервале температур от 80 до 300 К проводили в криостате с жидким азотом. При обработке результатов измерений были учтены поправки на изменения емкости, полученные в отдельном эксперименте с медным образцом (поправка “пустого опыта”), а также поправки на различное линейное расширение медного датчика и измеряемого образца с использованием данных по линейному расширению меди [5]. На полученной зависимости $L(T)$ в области $T = 122$ К была зарегистрирована особенность, которая наблюдалась как при охлаждении, так и при отогреве датчика.

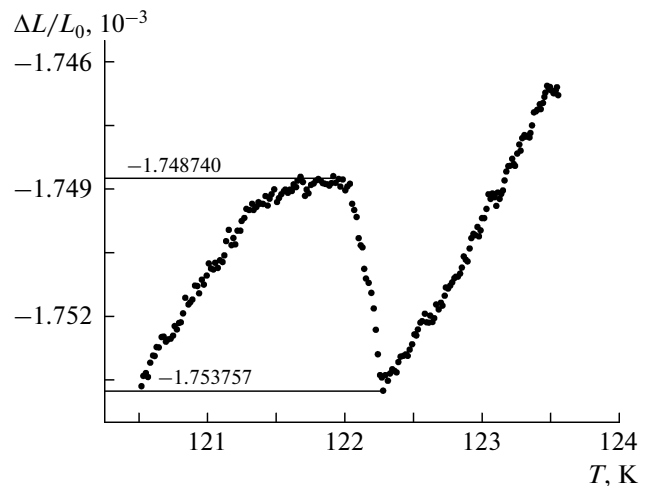


Рис. 2. Dilатометрические измерения образца CoS_2 в интервале температур 120–124 К при многократных циклах охлаждение–отогрев со скоростью 3×10^{-3} К/мин. $\Delta L = (L(T) - L_0)$, где $L_0 = L(293 \text{ К})$. Амплитуда изменений относительного удлинения образца на графике, демонстрирующем наблюдаемую особенность на зависимости $\Delta L/L_0$ от температуры, равна $5 \cdot 10^{-6}$.

Для более точного изучения этой особенности мы провели ряд измерений в интервале температур 119–125 К при многократных циклах охлаждение–отогрев со скоростью $3 \cdot 10^{-3}$ К/мин. Наглядной демонстрацией чувствительности dilatометра является четкое разрешение наблюдаемой особенности величиной $5 \cdot 10^{-6}$ на зависимости $(L(T) - L_0)/L_0$ от температуры (рис. 2). Температура перехода, определенная по положению минимума производной dL/dT , составила 122.15 К.

Чтобы уточнить температуру и род фазового перехода, мы провели серию циклов измерений охлаждение–отогрев в ближайшей окрестности перехода в интервале температур 121.8–122.5 К. Скорость изменения температуры составляла 4×10^{-4} К/мин. Разность показаний термометров, закрепленных на верхней и нижней частях медного емкостного датчика, не превышала 0.03 К. На рис. 3 представлены последовательные циклы охлаждение–отогрев через переход. Видно, что в пределах случайного разброса точек по температуре (0.02 К) температура перехода хорошо воспроизводится (гистерезис отсутствует). Отсутствие скачка объема и гистерезиса позволяет сделать заключение о том, что при давлении, равном нулю, в CoS_2 наблюдается фазовый переход второго рода. Среднеквадратичное отклонение полинома, аппроксимирующего монотонный низкотемпературный участок особенности, приведенной на рис. 3, равно $3.4 \cdot 10^{-6}$ пФ (обработан соответствующий участок исходных данных для $C(T)$), что соответствует чувствительности dilatометра 1.4 Å.

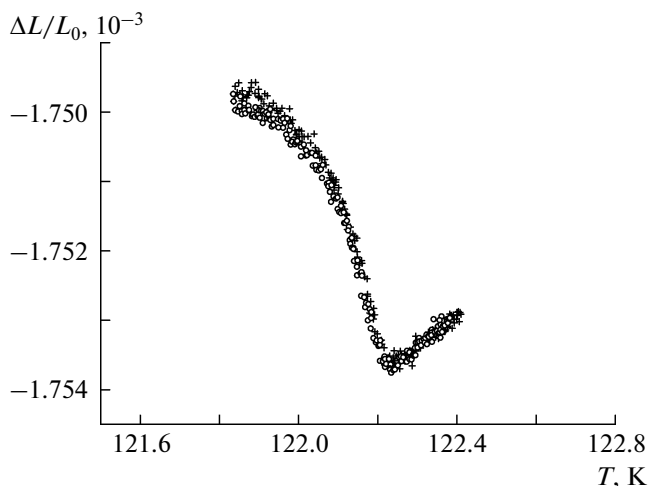


Рис. 3. Последовательные циклы охлаждение—отогрев (седьмой и восьмой) вблизи точки перехода при скорости изменения температуры $4 \cdot 10^{-4}$ К/мин.

Подробные исследования электрического сопротивления и магнитной восприимчивости CoS_2 под давлением показывают, что этот магнитный фазовый переход становится переходом первого рода уже при очень малом увеличении давления, так что трикритическая точка находится при давлении, близком к атмосферному [8].

Таким образом, описанный в данной работе dilatометр позволяет исследовать линейное тепловое расширение твердых образцов в области

фазовых переходов с чувствительностью $\sim 1.4 \text{ \AA}$, проводить последовательные циклы измерений при плавном охлаждении и отогреве с малыми скоростями $\sim 10^{-3}$ К/мин в узком интервале температур вблизи фазового перехода. В данной работе емкостный датчик с образцом находился в вакууме (10^{-5} Торр), однако датчик пригоден для измерений при высоких давлениях и имеет опорный конденсатор, предназначенный для нормирования измерений, выполненных в атмосфере газообразного гелия при повышенных давлениях.

Авторы благодарят С.М. Стишова за постоянный интерес к работе и полезные обсуждения.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Model AN 2550A Capacitance Bridge. Andeen-Hagerling inc.; <http://www.andeen-hagerling.com>
2. *Schmiedeshoff G.M., Lounsbury A.W., Luna D.J. et al.* // Rev. Sci. Instrum. 2006. V. 77. 123907.
3. *Зисман А.Н., Качинский В.Н., Ляховицкая В.А., Стишов С.М.* // ЖЭТФ. 1979. Т. 77. С. 640.
4. *Pott R., Schefzyk R.* // J. Phys. E: Sci. Instrum. 1983. V. 16. P. 445.
5. *Kroeger F.R., Swenson C.A.* // J. Appl. Phys. 1977. V. 48. P. 853.
6. *Смоленко Л.А.* // ПТЭ. 1969. № 1. С. 176.
7. Compact VTI SIV, Oxford Instruments Nanoscience, <http://www.oxford-instruments.com>
8. *Sidorov V.A., Krasnorussky V.N., Petrova A.E. et al.* // Phys. Rev. B. 2011. V. 83. 060412(R).