

⑫

DEMANDE DE BREVET D'INVENTION

A1

②2 Date de dépôt : 07.05.92.

③0 Priorité : 07.05.91 JP 13187091.

④3 Date de la mise à disposition du public de la
demande : 13.11.92 Bulletin 92/46.

⑤6 Liste des documents cités dans le rapport de
recherche : *Le rapport de recherche n'a pas été
établi à la date de publication de la demande.*

⑥0 Références à d'autres documents nationaux
apparentés :

⑦1 Demandeur(s) : Société dite : CHICHIBU CEMENT
CO LTD — JP.

⑦2 Inventeur(s) : Hiroshi Machida.

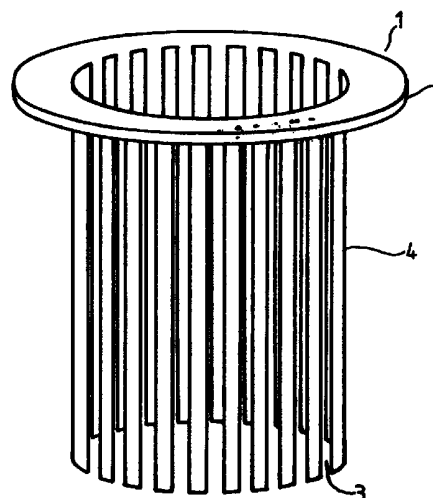
⑦3 Titulaire(s) :

⑦4 Mandataire : Cabinet Herrburger.

⑤4 Procédé et dispositif pour faire croître des cristaux, à partir d'une fonte d'alimentation.

⑤7 a) Procédé et dispositif pour faire croître des cristaux,
à partir d'une fonte d'alimentation,

b) Procédé et dispositif pour la mise en œuvre du pro-
cédé pour faire croître des cristaux à partir d'une fonte d'ali-
mentation par le processus Czochralski de production de
cristaux simples, procédé caractérisé en ce qu'il utilise un
dispositif de commande (1) dans la surface de la fonte pour
contrôler le débit de la fonte en travers de la surface de
celle-ci et dispositif pour la mise en œuvre du procédé ca-
ractérisé en ce qu'il comprend une paroi cylindrique (4) mu-
nie de moyens d'ouvertures.



"Procédé et dispositif pour faire croître des cristaux, à partir d'une fonte d'alimentation"

La présente invention concerne un procédé pour faire croître des cristaux à partir d'une fonte d'alimentation (ou matière en fusion), de manière à
5 produire des cristaux d'oxydes simples de haute qualité, par le processus Czochralski (qu'on appellera ci-après "processus CZ").

Le processus CZ de production de cristaux
10 d'oxydes simples est bien connu, ce processus permettant d'obtenir facilement des cristaux de grand diamètre présentant une faible contrainte thermique de manière à favoriser la fabrication de dispositifs électroniques. Pour faire croître des cristaux simples
15 de haute qualité, il est nécessaire de contrôler le débit d'une fonte. Dans la technique de croissance de cristaux de semi-conducteurs, il existe, entre autres, des procédés permettant de ralentir le débit d'une fonte par application d'un champ magnétique à la
20 fonte, et de créer un débit de fonte adapté à la croissance des cristaux en faisant tourner un creuset de façon que sa rotation corresponde à celle des cristaux en train de croître.

Dans le cas de la croissance de cristaux
25 simples d'oxydes, on considère que l'effet de contrôle

du débit d'une fonte par application d'un champ magnétique à celle-ci, peut se trouver réduit du fait de la faible conductivité de la fonte. De plus, les variations de température qui accompagnent le débit de la fonte peuvent être excessives du fait du nombre de Prandtl élevé de la fonte comparativement à celui du semi-conducteur. Par suite, on peut supposer que les variations de température de la fonte doivent être encore augmentées lorsqu'on fait tourner le creuset, de sorte que les procédés ci-dessus sont en général rarement utilisés pour faire croître des cristaux simples d'oxydes.

Pour ces raisons, lorsqu'on contrôle une fonte dans le processus CZ de production de cristaux simples d'oxydes, on a principalement utilisé jusqu'ici des procédés permettant d'obtenir un débit de fonte voulu par optimisation du rapport entre la hauteur et le diamètre d'un creuset et d'une fonte, ainsi que des gradients de température à la fois horizontaux et verticaux de la fonte par utilisation d'une disposition de zone chaude autour du creuset. On considère généralement qu'il est nécessaire de minimiser les variations de température et de composition à l'intérieur de la fonte, et de réduire les variations de température de la fonte à l'interface de croissance, pour obtenir des cristaux simples de haute qualité. Plus précisément, il est nécessaire de bien agiter la totalité de la fonte dans une situation telle qu'on contrôle les fluctuations de température de la fonte en travers et au voisinage de la surface de la fonte, la facilité avec laquelle on peut atteindre cette situation dépendant du nombre de Prandtl et de la conductibilité thermique de la fonte de croissance du cristal.

Lorsqu'on fait croître des cristaux d'un

matériau dont la fonte présente un petit nombre de Prandtl ou une faible conductibilité thermique, il est difficile de satisfaire simultanément les deux conditions consistant à ralentir le débit de la fonte et à agiter la totalité de cette fonte, du fait des grandes variations de température produites à la surface de la fonte par l'agitation de celle-ci, comme indiqué ci-dessus, de sorte qu'il devient difficile de réaliser les conditions optimales pour faire croître des cristaux simples de haute qualité.

Compte tenu de la situation ci-dessus de l'art antérieur, la présente invention a pour but de créer un procédé pour faire croître des cristaux simples dans une situation telle qu'on puisse ralentir le débit d'une fonte tout en agitant la totalité de cette fonte.

A cet effet, l'invention concerne un procédé pour faire croître des cristaux à partir d'une fonte d'alimentation par le processus Czochralski de production des cristaux simples, procédé caractérisé en ce qu'il utilise un dispositif de commande dans la surface de la fonte pour contrôler le débit de la fonte au travers de sa surface.

Selon une autre caractéristique de l'invention, celle-ci concerne un dispositif de commande pour contrôler le débit d'une fonte en travers de la surface de celle-ci, dispositif caractérisé en ce qu'il comprend une paroi cylindrique munie de moyens d'ouvertures.

Selon une autre caractéristique enfin de l'invention, les moyens d'ouvertures de la paroi cylindrique du dispositif de commande sont constitués par des fentes.

Ainsi, l'invention a pour but de créer un procédé pour faire croître des cristaux simples, ce

procédé étant caractérisé en ce qu'il consiste à utiliser un dispositif de commande cylindrique comportant un certain nombre de fentes verticales également espacées périphériquement qui traversent la
5 paroi latérale cylindrique comme indiqué à la figure 1, à introduire le dispositif de commande cylindrique dans une fonte contenue dans un creuset, et à faire croître les cristaux dans ce dispositif de commande cylindrique.

10 Le dispositif cylindrique peut être muni d'une collerette annulaire partant de son extrémité supérieure et permettant de le supporter. On a constaté, suivant les enseignements de la présente invention, qu'on pouvait établir un profil de
15 température convenable en travers de la surface de la fonte, et un gradient de température vertical dans la masse de la fonte au voisinage de la surface de cette fonte, suivant les besoins dépendant des propriétés des cristaux à faire croître et de la fonte, en
20 faisant varier le diamètre du corps cylindrique, le rapport d'ouverture des fentes (largeur de fente x nombre de fentes / périmètre du corps cylindrique), et la profondeur du corps cylindrique immergée dans la fonte.

25 Le diamètre du corps cylindrique, le rapport d'ouverture des fentes et la profondeur d'immersion du corps cylindrique présentant les valeurs optimales pour la croissance des cristaux, dépendent des propriétés des cristaux à faire croître. D'une façon
30 générale, plus la conductibilité thermique de la fonte est faible, plus le diamètre du corps cylindrique tend à être faible, plus le rapport d'ouverture des fentes doit être faible, et plus la profondeur d'immersion du corps cylindrique doit être grande.

35 Lorsqu'on réduit le diamètre du corps

cylindrique et le rapport d'ouverture des fentes, le gradient de température horizontal en travers de la surface de la fonte diminue en conséquence, ce qui rend généralement difficile de commander le diamètre
5 des cristaux en cours de croissance. Lorsque le corps cylindrique est immergé plus profondément dans la fonte, cette fonte est agitée plus fortement, ce qui augmente ainsi la vitesse du débit de la fonte à sa surface en provoquant des fluctuations de température
10 excessives à la surface de la fonte. Cependant, lorsqu'on plonge le corps cylindrique encore plus profondément dans la fonte, l'effet d'agitation de la fonte est quelque peu réduit. On peut donc penser que le diamètre du corps cylindrique, le rapport
15 d'ouverture des fentes et la profondeur d'immersion du corps cylindrique, présentent des plages de valeurs optimales respectives.

De plus, on peut déplacer le dispositif de commande cylindrique dans une direction parallèle à la direction dans laquelle les cristaux s'élèvent lorsque
20 ces cristaux croissent en longueur, ce qui permet ainsi d'établir le débit de fonte approprié suivant le stade de croissance, en assurant ainsi une croissance plus stable des cristaux.

25 Les fentes servent à faire varier l'effet de contrôle du débit ainsi qu'à commander le débit de la fonte arrivant de l'extérieur du corps cylindrique du dispositif de commande pour pénétrer à l'intérieur de celui-ci, suivant le rapport d'ouverture des fentes.

30 On peut faire varier le diamètre du corps cylindrique pour optimiser la température de celui-ci. Lorsque ce diamètre s'approche du diamètre du creuset, le courant d'induction haute fréquence le long de la surface du corps cylindrique augmente en conséquence,
35 ce qui conduit à une augmentation de température de

sorte que le gradient de température radial de la fonte en travers de sa surface tend à augmenter.

On peut faire varier la profondeur d'introduction du corps cylindrique dans la fonte pour
5 contrôler l'effet de l'agitation de la fonte. Lorsqu'on introduit le corps cylindrique plus profondément dans la fonte, on pense que l'effet d'agitation du corps cylindrique diminue, augmente puis diminue ensuite, de sorte que le gradient de
10 température vertical de la masse de la fonte tend à augmenter, à diminuer puis à augmenter ensuite.

On peut donc commander ces diverses conditions pour établir à la fois le gradient de température radial de la fonte en travers de sa
15 surface et le gradient de température vertical de la masse de la fonte.

L'invention sera décrite plus en détails ci-après en se référant aux dessins ci-joints dans lesquels :

20 - la figure 1 est une vue d'ensemble, en perspective, d'un dispositif de commande destiné à être utilisé pour contrôler le débit de surface d'une fonte selon la présente invention ;

- la figure 2 est une vue schématique d'un
25 système destiné à faire croître des cristaux ; et

- la figure 3 est une vue en perspective d'un dispositif de commande selon une autre forme de réalisation de l'invention, destiné à commander le débit de surface d'une fonte selon la présente
30 invention.

La figure 1 est une vue en perspective d'un dispositif de commande cylindrique 1 destiné à être utilisé avec un creuset en l'introduisant dans ce creuset. Le dispositif de commande cylindrique 1
35 comprend une partie de corps cylindrique 4 munie d'un

certain nombre de fentes verticales également espacées
périphériquement 3, et une collerette annulaire 2
faisant corps avec l'extrémité supérieure de la partie
de corps et partant radialement de celle-ci vers
5 l'extérieur.

La figure 2 représente un système de
croissance de cristaux équipé d'une zone chaude
présentant une construction classique sauf pour le
dispositif de commande cylindrique 1. Brièvement, le
10 système comprend un creuset 6 supporté par un
isolateur thermique 5. Le creuset 6 est rempli d'une
fonte 7 chauffée par une bobine génératrice de hautes
fréquences 8 entourant le creuset. Des cristaux de
semence sont noyés dans la fonte. On peut produire des
15 cristaux simples en retirant les cristaux de semence
de la fonte à une vitesse prédéterminée.

On décrira ci-après les résultats obtenus en
faisant croître des cristaux simples de TiO_2 par un
procédé CZ. On sait qu'une fonte de dioxyde de titane
20 TiO_2 présente un nombre de Prandtl plus élevé et une
conductibilité thermique plus faible que les fontes
d'oxydes en général, et l'on a donc constaté qu'il
était difficile de faire croître des cristaux simples
de TiO_2 de manière stable en utilisant un procédé CZ,
25 du fait des variations de diamètre typiquement
excessives des cristaux obtenus. En particulier, les
cristaux sont susceptibles de se courber et des
fluctuations de la configuration de l'interface
solide-liquide risquent de se produire lorsque la
30 croissance des cristaux a atteint la longueur
d'environ 10 mm. On ne trouve pas d'exemples dans
lesquels on ait pu faire croître avec succès des
cristaux simples de plus d'environ 10 mm de longueur.

Le dispositif de commande selon la présente
35 invention a été utilisé pour obtenir un débit de fonte

permettant de faire croître convenablement des cristaux. Les exemples qui suivent comprennent des exemples ayant utilisé l'invention et un exemple n'ayant pas utilisé l'invention :

5 Exemple 1

On a chargé 270 grammes de matière première dans un creuset en iridium de 50 mm de diamètre et 50 mm de hauteur pour faire croître des cristaux en utilisant un dispositif comprenant une zone chaude
10 comme indiqué à la figure 2, mais sans dispositif de commande cylindrique selon l'invention. L'atmosphère utilisée pour faire croître les cristaux était une atmosphère d'argon. On faisait monter les cristaux dans une orientation suivant l'axe C, à une vitesse de
15 2 mm/heure et à une vitesse de rotation de 20 tours/minute. On commandait la puissance de sortie du générateur de hautes fréquences de manière à maintenir le diamètre des cristaux à environ 25 mm, mais lorsque la croissance atteignait la longueur de 7 mm, les
20 cristaux se mettaient à croître brusquement vers la paroi périphérique du creuset au point qu'il devenait très difficile de contrôler plus longtemps le diamètre.

Exemple 2

25 On a chargé 270 grammes de matière première dans un creuset analogue à celui utilisé à l'exemple 1, mais en introduisant dans ce creuset un dispositif de commande cylindrique tel que celui illustré à la figure 1. Le dispositif de commande cylindrique
30 présentait un diamètre de 40 mm, une hauteur de 50 mm, et comportait 20 fentes présentant chacune une largeur de 3 mm. Ce dispositif de commande cylindrique était plongé dans la fonte à la profondeur de 10 mm. On utilisait une atmosphère de croissance des cristaux
35 constituée par le l'argon. On faisant monter les

cristaux dans une orientation suivant l'axe C, à une vitesse de 2 mm/heure et à une vitesse de rotation de 20 tours/minute. Le résultat était qu'on pouvait faire croître de manière fiable des cristaux simples de 30 mm de diamètre et 50 mm de longueur. On pense que l'utilisation du dispositif de commande cylindrique décrit ci-dessus a permis de créer des gradients de température radiaux de la fonte en travers de sa surface, ainsi que des gradients de température verticaux de la masse de la fonte, qui permettent de faire croître convenablement des cristaux simples de TiO_2 .

Exemple 3

On a chargé 270 grammes de matière première dans un creuset analogue à celui utilisé à l'exemple 1, mais en introduisant dans ce creuset un dispositif de commande cylindrique tel que celui illustré à la figure 3. Le dispositif de commande cylindrique présentait un diamètre de 40 mm, une hauteur de 50 mm, et comportant dix fentes présentant chacune une largeur de 3 mm. Ce dispositif de commande cylindrique était plongé dans la fonte à la profondeur de 15 mm. On utilisait une atmosphère de croissance des cristaux constituée par de l'argon. On faisait monter les cristaux dans une orientation suivant l'axe C, à une vitesse de 2 mm/heure et à une vitesse de rotation de 15 tours/minute. Le résultat était qu'on pouvait faire croître de manière stable des cristaux simples de 25 mm de diamètre et 40 mm de longueur. Comme dans le cas de l'exemple 2, on pense que l'utilisation du dispositif de commande cylindrique décrit ci-dessus a permis de créer des gradients de température et un débit de la fonte qui permettent de faire croître convenablement des cristaux simples de TiO_2 .

On remarquera que pour faire croître des

cristaux simples d'oxydes, la présente invention fournit les avantages ci-après grâce à l'utilisation d'un dispositif de commande cylindrique particulier permettant de contrôler le débit de la fonte à l'endroit et au voisinage de sa surface.

1. Il est possible de commander le débit de la fonte, ce qu'on considérait jusqu'ici comme très difficile.

2. Il est possible d'empêcher l'intrusion d'impuretés provenant de la surface de la fonte et pénétrant dans l'interface où s'effectue la croissance des cristaux, ce qui permet de produire des cristaux simples de plus haute qualité.

3. On peut contrôler l'influence du rayonnement de la surface de la fonte et de la paroi du creuset sur les cristaux en cours de croissance, en faisant varier le rapport d'ouverture des fentes du corps cylindrique immergé dans la partie supérieure de la fonte, pour obtenir ainsi une plage plus large de gradients de température verticaux convenables dans la partie supérieure de la masse de la fonte, ce qui permet ainsi de produire des cristaux simples de haute qualité à un rythme de croissance plus élevé.

La description ci-dessus illustre des formes préférées de réalisation de l'invention qui ne doivent pas être considérées comme une limitation de celle-ci, et de nombreuses variantes possibles apparaîtront à l'évidence aux spécialistes de la question dans le cadre de l'invention.

30

35

REVENDICATIONS

1) Procédé pour faire croître des cristaux à partir d'une fonte d'alimentation par le processus Czochralski de production de cristaux simples, procédé caractérisé en ce qu'il utilise un dispositif de commande (1) dans la surface de la fonte pour contrôler le débit de la fonte au travers de sa surface.

2) Dispositif pour la mise en oeuvre du procédé selon la revendication 1, pour contrôler le débit d'une fonte en travers de la surface de celle-ci, dispositif caractérisé en ce qu'il comprend une paroi cylindrique (4) munie de moyens d'ouvertures.

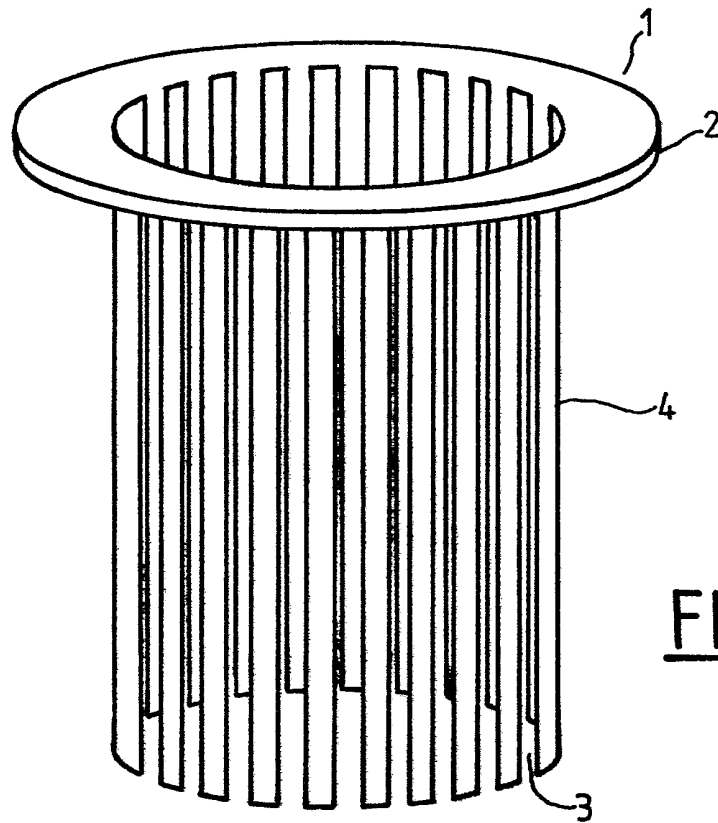
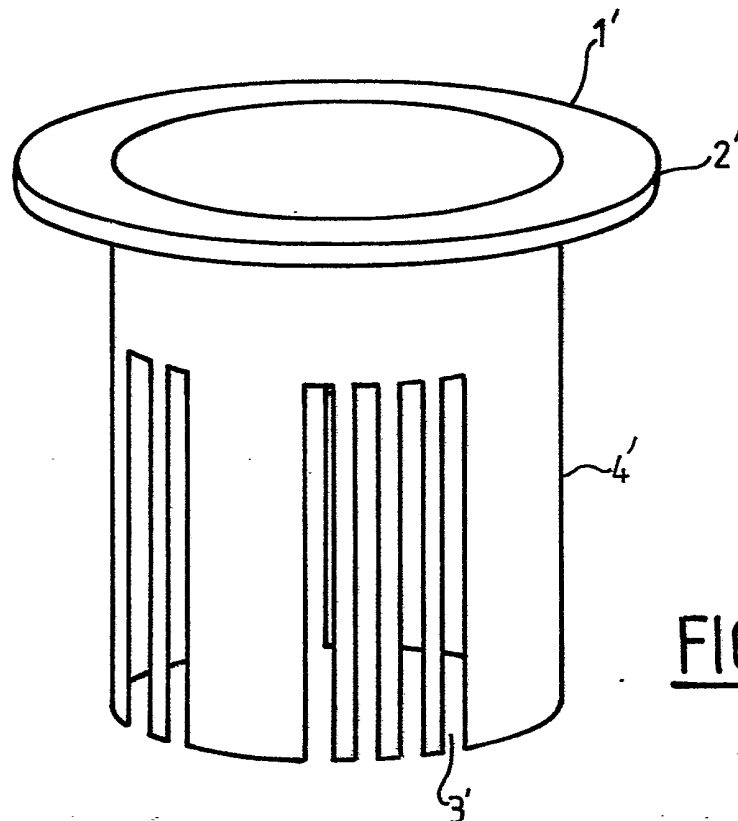
3) Dispositif de commande pour contrôler le débit d'une fonte en travers de la surface de celle-ci, selon la revendication 2, dispositif caractérisé en ce que les moyens d'ouvertures sont constitués par des fentes (3).

20

25

30

35

FIG. 1FIG. 3

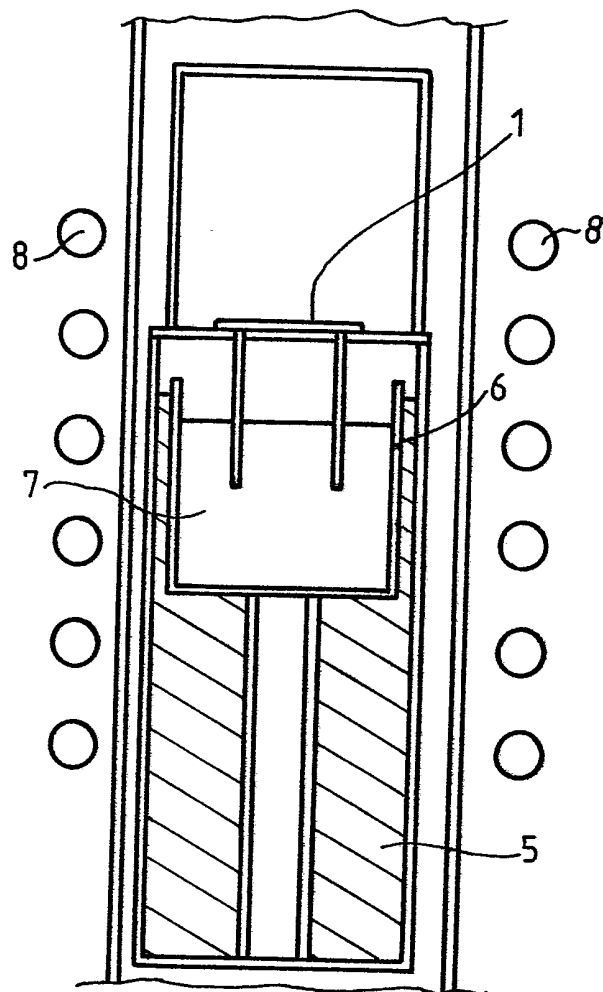


FIG. 2