



УКРАЇНА

(19) **UA** (11) **115000** (13) **C2**
(51) МПК (2017.01)
C30B 15/00
C30B 17/00

МІНІСТЕРСТВО
ЕКОНОМІЧНОГО
РОЗВИТКУ І ТОРГІВЛІ
УКРАЇНИ

(12) ОПИС ДО ПАТЕНТУ НА ВИНАХІД

| | |
|---|--|
| (21) Номер заявки: а 2016 08819 | (72) Винахідник(и): Архипов Павло Васильович (UA), Сідлецький Олег Цезаревич (UA), Ткаченко Сергій Анатолійович (UA), Герасімов Ярослав Віталійович (UA), Галенін Євгеній Петрович (UA) |
| (22) Дата подання заявки: 15.08.2016 | |
| (24) Дата, з якої є чинними права на винахід: 28.08.2017 | |
| (41) Публікація відомостей про заяву: 10.03.2017, Бюл.№ 5 | (73) Власник(и): ІНСТИТУТ СЦИНТИЛЯЦІЙНИХ МАТЕРІАЛІВ НАН УКРАЇНИ, пр. Леніна, 60, м. Харків, 61001 (UA) |
| (46) Публікація відомостей про видачу патенту: 28.08.2017, Бюл.№ 16 | (56) Перелік документів, взятих до уваги експертизою: UA 17930 A, 31.10.1997 UA 88591 C2, 26.10.2009 UA 108932 C2, 25.06.2015 RU 2147632 C1 20.04.2000 CN 1016711845 A, 17.03.2010 Cockayne B.J. Czochralski Growth of Oxide Single Crystals Platinum Metals Review. - 1974. – Vol. 18, 3. - P. 86-91 |

(54) СПОСІБ НАПЛАВЛЕННЯ ТИГЛІВ СИРОВИНОЮ ДЛЯ ВИРОЩУВАННЯ МОНОКРИСТАЛІВ

(57) Реферат:

Винахід належить до технології вирощування монокристалів методами Чохральського та Кіропулоса. Спосіб наплавлення тиглів сировиною для вирощування монокристалів, який включає завантаження сировини в тигель, розміщення тигля в ростовій камері, нагрівання та одержання розплаву, довантаження тигля сплавленням до бездефектної частини затравки сировини з масою, якої бракує для необхідного завантаження тигля, закріпленою в затравкоутримувачі безпосередньо після розміщення тигля в ростовій камері, як сировину використовують попередньо пресовану шихту, частину якої з'єднують із затравкою спіканням при температурі 0,7-0,9 від температури плавлення кристала. Винахід забезпечує проведення процесу вирощування монокристалів в герметичній камері, що дозволяє скоротити сумарний час та енерговитрати для вирощування монокристала за рахунок значного спрощення операції наповнення тигля, та збільшує ресурс роботи тиглів.

UA 115000 C2

Винахід належить до технології вирощування монокристалів методами Чохральського та Кіропулоса та може бути використаний під час промислового вирощування монокристалів, які застосовуються у фізиці високих енергій, ядерній фізиці, у напівпровідниковій промисловості, медицині та в інших галузях науки і техніки.

Відомо, що однією з значних проблем під час вирощування монокристалів методами Чохральського та Кіропулоса є деформація та руйнування тиглів, які найчастіше виготовляють з дорогоцінних благородних металів, руйнування останніх значно збільшує собівартість готової продукції.

До того ж, у зв'язку з низькою насипною щільністю сировини, потрібної для вирощування монокристалів, необхідне поетапне завантаження тигля, яке передбачає повтор циклу "завантаження тигля сировиною - плавлення сировини - охолодження тигля із сировиною" до одержання необхідного рівня розплаву. У результаті цього при багаторазовому охолодженні тигля відбувається механічна деформація та утворення тріщин в його стінках через різницю температурних коефіцієнтів розширення матеріалу тигля та сировини.

Відомий спосіб наплавлення тиглів сировиною для вирощування монокристалів германату вісмуту зі структурою евлітину [пат України № 16679, С30В15/00], що включає завантаження сировини в платиновий тигель, поміщення тигля до ростової камери, нагрівання та одержання розплаву, довантаження сировини, що здійснюють за допомогою кварцової лійки для досипання сировини при напавленні, замість якої після довантаження поміщають затравку.

Недоліком цього способу є необхідність витягування кварцової лійки при високій температурі, що істотно ускладнює спосіб та робить його небезпечним, а розміщення не прогрітого затравочного кристала на місце лійки найчастіше викликає його розтріскування за рахунок введення у високотемпературну область ростового вузла.

Відомий спосіб наплавлення тиглю сировиною для вирощування монокристалів лантан-галієвого силікату [пат РФ № 2147632, С30В29/34, С30В15/00], що включає завантаження попередньо спресованих у вигляді порожнього циліндра таблеток шихти в тигель, уздовж центральної осі якого проходить кристалоутримувач із затравкою, який є напрямною, нагрів і одержання розплаву. Під час плавлення таблетки опускаються в тигель уздовж кристалоутримувача у міру плавлення нижніх шарів таблеток. Після плавлення таблеток затравку приводять у зіткнення з розплавом і приступають до вирощування кристала.

Недоліком цього способу є специфічність кристалоутримувача. При напавленні тиглів даним способом кристалоутримувач під час плавлення шихти має безпосередній контакт із сировиною за високої температури, тому матеріал кристалоутримувача повинен бути стійким до впливу шихти і не забруднювати її. Таким матеріалом є матеріал тигля, а саме найчастіше платина, іридій або інші благородні метали, що значно підвищує собівартість вирощуваних кристалів. Також, складність виготовлення кільцевих прес-форм для отримання таблеток теж підвищує собівартість вирощуваних кристалів.

Відомий спосіб наплавлення тигля сировиною для вирощування монокристалів [пат України № 88591, С30В 15/00, С30В 17/00], що включає завантаження сировини в тигель, розміщення тигля в ростовій камері, нагрівання й одержання розплаву, довантаження сировини сплавленням до затравки попередньо вирощеного монокристала з масою, якої бракує для необхідного завантаження тигля, та закріпленого в затравкоутримувачі безпосередньо після розміщення тигля в ростовій камері.

Недоліком цього методу є те, що для наплавлення тигля використовуються готові кристали, які потрібно вирощувати методом Чохральського. Це значно ускладнює процес росту та збільшує собівартість готового монокристала.

Як найближчий аналог був вибраний останній з наведених аналогів.

В основу винаходу поставлено задачу розробки способу наплавлення тиглю сировиною для вирощування монокристалів, який забезпечить спрощення технологічного процесу та, як наслідок, зниження собівартості вирощуваних монокристалів.

Вирішення поставленої задачі здійснюється тим, що в способі наплавлення тиглів сировиною для вирощування монокристалів, який складається з завантаження частини сировини в тигель, розміщення тигля в ростовій камері, нагрівання та одержання розплаву, довантаження тигля сплавленням до бездефектної частини затравки сировини з масою, якої бракує для необхідного завантаження тигля, закріпленої в затравкоутримувачі безпосередньо після розміщення тигля в ростовій камері відповідно до винаходу, як сировину використовують попередньо пресовану шихту, частину якої з'єднують із затравкою спіканням при температурі 0,7-0,9 від температури плавлення кристала.

Завантаження сировини в тигель попередньо пресованою шихтою дає можливість завантажити у тигель кількість сировини, що необхідна для вирощування монокристала за один раз, що значно спрощує технологічний процес, завдяки високій насипній щільності сировини.

Довантаження тигля сплавленням до бездефектної частини затравки сировиною, яку з'єднують із затравкою спіканням та розташовують на затравкоутримувач, забезпечує проведення процесу вирощування монокристалів в герметичній камері, що дозволяє скоротити сумарний час та енерговитрати для вирощування монокристала за рахунок значного спрощення операції наповнення тигля, та збільшує ресурс роботи тиглів. Також, оскільки сплавлення блока шихти відбувається разом з частиною затравки, стає можливим швидко підібрати режим затравлення, що суттєво скорочує час затравлення.

Експериментально було визначено, що температура спікання шихти з затравкою 0,7-0,9 від температури плавлення ($T_{пл}$) кристала є оптимальною. Під час спікання за температури, нижчої ніж 0,7 від $T_{пл}$ кристала для отримання потрібної термічної усадки час спікання не виправдано збільшується. Спікання за температури, вищої ніж 0,9 від $T_{пл}$ кристала, є небезпечне через складність контролю температури по всій зоні спікання.

Найбільш ефективний запропонований спосіб для наплавлення та вирощування кристалів багатокомпонентних систем, у тиглях з дорогоцінних металів, де як сировина використовується шихта, яку необхідно попередньо термічно синтезувати.

У таблиці представлені порівняльні дані різних способів наплавлення тиглів сировиною для вирощування монокристалів.

Спосіб наплавлення тиглів сировиною при вирощуванні монокристалів реалізують наступними прикладами.

Приклад 1. Спосіб наплавлення платиного тигля діаметром 100 мм сировиною для вирощування монокристалів германату вісмуту зі структурою евлітину методом Чохральського.

Сировину з суміші оксидів вісмуту і германію в молярному співвідношенні 2:3 відповідно пресують в циліндричні блоки діаметром 125 мм та довжиною 150 мм. У торці одного з блоків роблять заглиблення діаметром 15 мм, глибиною 20-30 мм. У заглиблення закладають нижній кінець затравки діаметром 14 мм. Заповнюють простір між затравкою та блоком цим же матеріалом. Далі спікають блоки при температурі 700-900 °C протягом 3 годин. Тигель завантажують спеченими блоками з шихти, а блок із закріпленою затравкою підвішують у затравкотримачі в ростовому вузлі. Нагрівають сировину в тиглі до плавлення та здійснюють довантаження тигля шляхом опускання в розплав блока шихти, закріпленого на затравці. Далі вирощують кристал.

Приклад 2. Спосіб наплавлення молібденового тигля діаметром 50 мм сировиною для вирощування монокристалів ітрію-алюмінієвого гранату (YAG) методом Чохральського.

Сировину з суміші оксидів ітрію та алюмінію в молярному співвідношенні 3:5 відповідно пресують у циліндричні блоки діаметром 65 мм та довжиною 75 мм. У торці одного з блоків роблять заглиблення діаметром 12 мм та глибиною 10-15 мм. У заглиблення закладають нижній кінець затравки діаметром 12 мм. Заповнюють простір між затравкою та блоком сировиною. Спікають блоки при температурі 1700-1800 °C протягом 3 годин. Тигель завантажують спеченими блоками з шихти, а блок з закріпленою затравкою підвішують в затравкотримачі в ростовому вузлі. Нагрівають сировину в тиглі до плавлення та здійснюють довантаження тигля шляхом опускання в розплав блоку шихти, закріпленого на затравці. Далі вирощують кристал.

Як видно з таблиці, у порівнянні з найближчим аналогом, кількість циклів вирощування монокристалів до відновлення тигля зросла на 25-50 %, а час наплавлення та енерговитрати під час вирощування монокристала зменшились на 25 %, що підтверджує ефективність даного способу через збільшення ресурсу тиглів та зменшення енерговитрат та дозволяє знизити собівартість вирощуваних монокристалів.

Таблиця

| | Кількість циклів вирощування монокристалів до відновлення тигля (залежно від типу вирощуваного монокристала) | Час наплавлення та енерговитрати, відн. од. |
|-----------------------------|--|---|
| Поетапне наплавлення | 5-8 | 1 |
| Спосіб, згідно з RU 2147632 | 15-30 | 0,8 |
| Спосіб, згідно з UA 88591 | 15-30 | 0,6 |
| Спосіб, що заявляється | 30-40 | 0,5 |

ФОРМУЛА ВИНАХОДУ

Спосіб наплавлення тиглів сировиною для вирощування монокристалів, який включає завантаження сировини в тигель, розміщення тигля в ростовій камері, нагрівання та одержання розплаву, довантаження тигля сплавленням до бездефектної частини затравки сировини з масою, якої бракує для необхідного завантаження тигля, закріпленої в затравкоутримувачі безпосередньо після розміщення тигля в ростовій камері, який **відрізняється** тим, що як сировину використовують попередньо пресовану шихту, частину якої з'єднують із затравкою спіканням при температурі 0,7-0,9 від температури плавлення кристала.

Комп'ютерна верстка Л. Ціхановська

Міністерство економічного розвитку і торгівлі України, вул. М. Грушевського, 12/2, м. Київ, 01008, Україна

ДП "Український інститут інтелектуальної власності", вул. Глазунова, 1, м. Київ – 42, 01601