



**Ministero delle Attività Produttive**  
DIREZIONE GENERALE PER LO SVILUPPO PRODUTTIVO E LA COMPETITIVITA'  
UFFICIO ITALIANO BREVETTI E MARCHI

**BREVETTO PER INVENZIONE INDUSTRIALE**

N. 01321252

Il presente brevetto viene concesso per l'invenzione oggetto della domanda sotto specificata:

num. domanda	anno	C.C.I.A.A.	data pres. domanda	classifica
000272	2000	BOLOGNA	11/05/2000	B01D

TITOLARE    CONSIGLIO NAZIONALE DELLE RICERCHE A ROMA  
INDIRIZZO    CONSIGLIO NAZIONALE DELLE RICERCHE I.S.M.  
                  VIA GOBETTI, 101  
                  40100 BOLOGNA  
TITOLO        REALIZZAZIONE DI UNA CELLA DI EFFUSIONE A  
                  GRADIENTE DI TEMPERATURA A SINGOLO FILAMENTO.  
INVENTORE    MURGIA MAURO

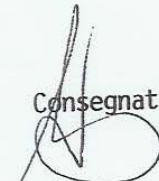


Roma, 8 GENNAIO 2004

IL DIRIGENTE DELL'UFFICIO G6  
F.to ING. GIOVANNI TETI

PER COPIA CONFORME DELL'ORIGINALE

Consegnato il

 2/03/2004

# **Realizzazione di una cella di effusione a gradiente di temperatura a singolo filamento**

Titolare: Consiglio Nazionale delle Ricerche P.le Aldo Moro, 7 Roma 00185

## **Riassunto**

Viene trattata la realizzazione di una cella di effusione a basso costo a singolo filamento da usare per la realizzazione di film sottili in sistemi da vuoto e da ultra alto vuoto. L'elemento riscaldante ha una forma e delle caratteristiche tali da indurre un gradiente di temperatura lungo l'asse del crogiolo della cella, per produrre un flusso uniforme di molecole con una buona stabilità nel tempo e superare problemi di ricondensazione e la formazione di aggregati molecolari sull'orifizio di uscita, che ricadono nel materiale da evaporare.

## **SITUAZIONE**

I materiali organici coniugati ed i fullereni rappresentano una nuova classe di materiali semiconduttori otticamente ed elettricamente attivi, di grande impatto innovativo nella competizione tecnologica del prossimo futuro. La possibilità di depositare in forma di film sottile e di crescere per sublimazione in vuoto molecole organiche, ha aperto nuove strade ai semiconduttori organici anche per la possibilità di estendere a questi materiali l'impiego della tecnologia planare, largamente

impiegata per i semiconduttori inorganici. La processabilità dei composti organici ed il loro basso costo, li rende particolarmente appetibili nei dispositivi per l'elettronica e la fotonica. Tra le applicazioni di maggiore interesse vi sono: Diodi emettitori di luce (LED) per display a larga area, transistor ad effetto di campo (FET), dispositivi elettrocromici e per l'energetica. Sono numerose le aziende attive nel settore, che hanno visto nei nuovi materiali una valida alternativa ai materiali inorganici. Accanto ad essi la comunità scientifica internazionale sta guardando con attenzione ai materiali molecolari per un loro utilizzo in settori normalmente ad appannaggio dei materiali inorganici

La realizzazione di film sottili per sublimazione termica mediante celle di effusione, è una tecnica ben nota ed ampiamente sperimentata per i materiali inorganici. Per la evaporazione in vuoto ed ultra alto vuoto (UHV) di molecole organiche è necessario poter disporre di celle di effusione che garantiscano una velocità di evaporazione costante durante la preparazione del film, realizzate con materiali adatti alle temperature di lavoro. Questa invenzione va inserita tra dispositivi e metodologie per creare flussi riproducibili, uniformi e ultra puri di molecole in vuoto utilizzando una cella di effusione. In particolare viene trattata l'invenzione di un dispositivo per produrre un flusso di molecole utilizzando in una cella di effusione un elemento

riscaldante con delle caratteristiche tali da indurre una buona stabilità del flusso nel tempo. La deposizione di materiali organici per flusso da fasci molecolari (OMBD) è una tecnica che permette un preciso controllo dei parametri di deposizione. Per avere una buona crescita, è importante avere un flusso stabile, riproducibile e uniforme per ognuna delle specie di molecole che andranno a costituire il film. Questo si ottiene attraverso l'uso di celle di Knudsen o di effusione. Una cella di Knudsen ideale è una cavità isoterma con un orifizio di uscita infinitesimale e pareti molto sottili. Le celle di effusione differiscono sostanzialmente dalle celle di Knudsen per il fatto che l'orifizio di uscita non è di dimensioni infinitesimali rispetto al diametro della cella, ma di dimensioni analoghe a quelle della cella stessa, al fine di aumentare la velocità di crescita. Nelle celle convenzionali, il materiale da evaporare, o carica di evaporazione, solido o liquido, è contenuto in una cella di materiale inerte riscaldato per via radiativa da un elemento resistivo o filamento. La temperatura è monitorata mediante sensori di temperatura (almeno uno). A causa di una notevole perdita di calore in prossimità dell'apertura del crogiolo attraverso cui fuoriesce il flusso di molecole, si ha un calo della temperatura sull'orifizio o in prossimità, che induce un forte gradiente lungo l'asse del crogiolo. In determinate condizioni dipendenti dal livello di vuoto e dal materiale utilizzato

per l'evaporazione, si può avere una ricondensazione all'uscita del crogiolo. A questo è associato un cambiamento nella densità del flusso ad una data temperatura che può diminuire o modificare l'uniformità del film. In particolari condizioni possono formarsi degli aggregati di molecole che ricadono nel crogiolo e vengono riemessi per reazione termodinamica sotto forma di microgocce che possono atterrare sul substrato causando dei difetti. Per mantenere costante il flusso è necessario aumentare in continuazione la temperatura del filamento. In particolare con i materiali organici la ricondensazione può raggiungere livelli tali da occludere completamente l'apertura. Per superare questo inconveniente è necessario preparare delle celle in grado di compensare la perdita in calore che si ha in prossimità dell'orifizio di uscita. Rispetto al brevetto BOA99A000591 depositato dallo stesso richiedente presso l'ufficio provinciale ind. comm. ed artigianato di Bologna il 4/11/1999, questa cella permette di ottenere un gradiente di temperatura che può essere adattato alle caratteristiche del particolare materiale da evaporare

## **SOMMARIO DELL' INVENZIONE**

Il dispositivo presentato in questa invenzione è una cella di effusione a singolo filamento, in grado di generare un flusso di molecole riproducibile ed uniforme, e permette di superare i problemi associati al forte gradiente termico lungo l'asse del

crogiolo, cui è associato un fenomeno di ricondensazione in prossimità dell'uscita del crogiolo e la formazione di aggregati di molecole sull'orifizio di uscita che ricadono nel materiale da evaporare.

L'oggetto della presente invenzione include un crogiolo cilindrico, avente una parte aperta detta orifizio o apertura ed una parte chiusa, in grado di alloggiare la sostanza da evaporare, da un filamento collocato in modo da avvolgere il crogiolo in modo non induttivo, con una sezione nella parte alta del filamento, in corrispondenza delle curve e dei tratti immediatamente adiacenti, in prossimità della apertura del crogiolo, di dimensioni minori rispetto alla sezione nella parte bassa del filamento, in corrispondenza della parte chiusa del crogiolo. Questo crea un gradiente di temperatura lungo l'asse del crogiolo, che compensa il gradiente dovuto allo scambio termico con l'esterno della cella in prossimità dell'orifizio di uscita.

Il crogiolo, realizzato con materiali opportuni, inerti alle temperature di lavoro, e trasparenti rispetto alla radiazione infrarossa, deve essere in grado di sopportare forti stress termici e di contenere il materiale da evaporare senza che questi possa diffondere attraverso le pareti.

Il corpo del crogiolo è inserito in una cavità a lui coassiale detta cilindro interno, almeno della medesima lunghezza del crogiolo,

che lo isola meccanicamente dal filamento e dalla luce generata dal filamento stesso qualora il crogiolo sia in quarzo. Il materiale utilizzato per la preparazione di questa cavità cilindrica presenta una conducibilità termica molto elevata alle temperature di lavoro é facilmente lavorabile, non tossico, con una resistenza eccellente agli stress termici.

Il filamento é posto in modo da avvolgere in modo non induttivo l'intero corpo del cilindro interno, senza entrare in contatto con il crogiolo, ed e' realizzato partendo da una lamina di materiale resistivo duttile, in modo da poter essere adattato alla forma del cilindro. Viene usato materiale refrattario di elevata purezza opportunamente sagomato.

Il crogiolo, il cilindro interno, il filamento, sono inseriti in un altro cilindro detto cilindro esterno. Anche questo cilindro è coassiale rispetto al tutto e della medesima lunghezza del cilindro interno. Nel cilindro esterno sono ricavate le sedi dei sensori di temperatura (almeno uno). La posizione dei fori in cui inserire i sensori di temperatura é tale da avere l'elemento sensibile ad una distanza del filamento identica alla distanza del filamento dalle pareti del crogiolo. I sensori di temperatura vengono inseriti nei fori realizzati all'interno delle pareti del cilindro esterno. Se i sensori sono due vengono collocati in posizione diametralmente opposta, tale da permettere una misura accurata della temperatura

lungo l'asse del crogiolo. Per questa ragione sono inseriti ad una profondità tale da campionare la temperatura del crogiolo vicino o in contatto con l'orifizio di uscita e vicino al fondo. La parte inferiore del crogiolo appoggia su un disco di supporto, di diametro uguale al diametro esterno del cilindro esterno. Questo disco serve anche da supporto per il filamento, che risulta costretto tra i due cilindri ed il disco inferiore. In questo sono ricavati anche i fori per l'alimentazione del filamento e dei sensori.

La parte superiore della cella viene chiusa con un anello di materiale inerte ed isolante elettricamente, con una buona conducibilità termica, di diametro esterno uguale al diametro esterno del cilindro esterno, di diametro interno uguale al diametro esterno del crogiolo.

Tutto il sistema descritto è inserito in uno schermo di calore che serve a non dissipare verso l'esterno della cella il calore prodotto dal filamento. Esso avvolge la cella nella parte laterale, inferiore e superiore. Lo schermo laterale circonda il cilindro esterno. Esso è composto da una serie di fogli concentrici isolati termicamente. Il materiale utilizzato è un metallo refrattario inerte, facilmente saldabile con se stesso. La parte inferiore della cella è isolata termicamente mediante l'inserzione di schermi di calore in materiale refrattario, con una forma tale da coprire l'intera superficie del disco di supporto inferiore, fatti salvi i fori necessari

per i collegamenti elettrici e per i sensori di temperatura.

L'isolamento termico tra gli schermi avviene mediante bulinatura degli schermi e riposizionamento degli stessi con un angolo di sfasatura tra uno schermo ed il successivo tale da garantire un contatto per punti tra gli schermi.

La parte superiore della cella è isolata termicamente da uno schermo di calore realizzato con anelli di materiale refrattario, con una forma tale da coprire l'intera superficie dell'anello superiore.

Il filamento riscaldante è collegato elettricamente ad un alimentatore di potenza a bassa tensione. La temperatura della cella viene controllata mediante un sistema a feedback tra i sensori di temperatura, l'elemento riscaldante e l'alimentatore. La temperatura di lavoro della cella è compresa tra la temperatura ambiente e 1000°C e può raggiungere per brevi periodi 1200 °C dipendentemente dal materiale utilizzato per la realizzazione del crogiolo.

L'intero gruppo di elementi descritti, comprensivo del crogiolo, il cilindro interno, il filamento, il cilindro esterno, il disco di supporto inferiore, l'anello superiore, gli schermi laterali, gli schermi inferiori e quelli superiori, sono inseriti in un contenitore cilindrico detto involucro esterno, chiuso inferiormente e superiormente, fatto salvo un orifizio nella parte superiore per la fuoriuscita del materiale dal crogiolo, ed i fori per l'alimentazione

e per i sensori di temperatura nella parte inferiore. L'involucro esterno della cella è realizzato con materiale duttile ed inerte alle temperature di lavoro, tipicamente acciaio inox, che garantisce una resistenza meccanica alla cella e funge anche da supporto per fissare l'intera cella ad un'opportuna staffa all'interno della camera di deposizione.

L'intera cella descritta nella presente invenzione è adatta all'uso in sistemi MBE e OMBD commerciali. Con le sue caratteristiche, la presente invenzione permette di realizzare un flusso costante di molecole in una camera a vuoto o da ultra alto vuoto, adatto per la preparazione di film sottili, inducendo un gradiente di temperatura lungo l'asse del crogiolo, che permette di mantenere il flusso uniforme ed evitare la ricondensazione del materiale in prossimità dell'orifizio di uscita, diminuendo il numero di difetti presenti in un substrato preparato con questa cella rispetto al numero di difetti presente in un substrato preparato con una cella tradizionale.

## **DESCRIZIONE DETTAGLIATA DEGLI ELEMENTI**

### **(Fig.1, Fig.2)**

Il crogiolo 1, avente una parte aperta 20 ed una parte chiusa 21, è in grado di alloggiare la sostanza da evaporare. Esso è realizzato con materiali opportuni, inerti alle temperature di lavoro, e trasparenti rispetto alla radiazione infrarossa. Il crogiolo 1 deve essere in grado di sopportare forti stress termici e di contenere il

materiale da evaporare senza che questi possa diffondere attraverso le pareti. Il filamento 2 è realizzato in materiale refrattario, partendo da una lamina di materiale puro. La forma dell'elemento riscaldante é tale da indurre nella parte alta del filamento 2 una maggiore densità di potenza e quindi un maggiore riscaldamento, in misura inversamente proporzionale ai rapporti tra le corrispondenti aree. In corrispondenza della parte alta del filamento 2 ed in prossimità della zona della cella in cui si ha l'apertura 20 del crogiolo 1 da cui fuoriesce il materiale, la lamina che costituisce il filamento ha una sezione molto minore della sezione della lamina in corrispondenza della parte bassa del filamento in prossimità della parte chiusa 21 del crogiolo. Il rapporto tra la sezione della metà inferiore del filamento 2, esclusa la parte di filamento 2 utilizzato per i collegamenti elettrici, e la sezione della metà superiore è almeno  $> 1,2$

Il filamento 2 viene avvolto a stretto contatto del cilindro interno 4, poco più lungo del filamento 2, e il tutto viene inserito nel cilindro esterno 5, lungo come il cilindro interno 4, con un diametro interno tale da permettere di misura il passaggio del filamento 2 avvolto attorno al cilindro interno 4.

Il cilindro interno 4 è realizzato in materiale fortemente conduttivo termicamente ed isolante elettricamente, inerte alle temperature di lavoro ed a contatto con i materiali circostanti

Il cilindro esterno 5 è realizzato in materiale fortemente conduttivo termicamente ed isolante elettricamente, inerte alle temperature di lavoro ed a contatto con i materiali circostanti. Lungo le pareti del cilindro esterno 5 sono ricavati due fori 6,7 per l'alloggiamento dei sensori di temperatura 17. Il primo foro 7 per alloggiare i sensori di temperatura 17 è collocato in prossimità della parte inferiore del cilindro esterno 5, il secondo foro 6 in prossimità della estremità superiore del cilindro esterno 5. Essi sono ricavati nello spessore della parete del cilindro esterno 5 in modo da permettere una misura corretta della temperatura.

Il disco inferiore 8 è realizzato in materiale fortemente conduttivo termicamente ed isolante elettricamente, inerte alle temperature di lavoro ed a contatto con i materiali circostanti. Il diametro esterno del disco è uguale al diametro esterno del cilindro esterno 5. Nel disco sono ricavati i fori per i sensori di temperatura 17 e per l'alimentazione del filamento 2.

L'anello superiore 9 è realizzato in materiale fortemente conduttivo termicamente ed isolante elettricamente, inerte alle temperature di lavoro ed a contatto con i materiali circostanti. Il diametro esterno dell'anello è uguale al diametro esterno del cilindro esterno 5, il diametro interno maggiore del diametro del crogiolo. Lo schermo di calore laterale 10 è costituito da fogli di materiale refrattario, ognuno dei quali avvolto a formare un

cilindro. Gli schermi sono disposti in modo coassiale l'uno dentro l'altro e tutti intorno al cilindro esterno 5.

Lo schermo di calore inferiore 11 è costituito da dischi di materiale refrattario, con un diametro uguale a quello del cilindro esterno 5. In ogni schermo sono ricavate tre coppie di fori 18,19, in corrispondenza di quelle del disco inferiore 8.

Lo schermo di calore superiore 12 è costituito da anelli di materiale refrattario con una forma tale da coprire l'intera superficie dell'anello superiore 9.

L'involucro esterno 13, tipicamente ma non in modo esclusivo, è di acciaio inox. La parte inferiore dell'involucro esterno 13 è chiusa con un disco d'acciaio 15 saldata per punti allo stesso. La parte superiore dell'involucro laterale 14 è chiusa con un anello d'acciaio 16, di diametro interno maggiore del diametro del crogiolo

## **RIVENDICAZIONI**

1. Una cella di effusione, comprendente un crogiolo, un elemento riscaldante detto filamento collocato in modo da avvolgere il crogiolo, un cilindro interno che separa il crogiolo dal filamento ed uno esterno che alloggia i sensori di temperatura e mantiene il filamento in posizione, un disco inferiore di supporto per il crogiolo ed il filamento, un anello superiore, uno schermo di calore, un involucro esterno, caratterizzata dal fatto che, al fine di assicurare una temperatura uniforme nell'intero volume del crogiolo, per la necessità di avere un maggiore riscaldamento nella parte superiore dell'elemento riscaldante , in corrispondenza della parte aperta del crogiolo, la sezione della parte superiore di detto filamento deve essere opportunamente minore della sezione della parte inferiore di detto filamento.
2. Una cella secondo la rivendicazione 1, caratterizzata dal fatto che quando detto filamento è alimentato, la sua sezione é tale da indurre nella parte alta del filamento un maggiore riscaldamento rispetto alla parte inferiore del filamento, in misura inversamente proporzionale ai rapporti tra le corrispondenti sezioni.

3. Una cella secondo la rivendicazione 1, caratterizzata dal fatto che, al fine di assicurare una temperatura uniforme nell'intero volume del crogiolo, la larghezza di detto filamento è costante e lo spessore di detto filamento varia corrispondentemente, dalla parte superiore alla parte inferiore.
4. Una cella secondo la rivendicazione 1, caratterizzata dal fatto che in detto filamento il rapporto tra la sezione della metà inferiore, esclusa la parte di detto filamento utilizzato per i collegamenti elettrici, e la sezione della metà superiore è  $> 1$ .

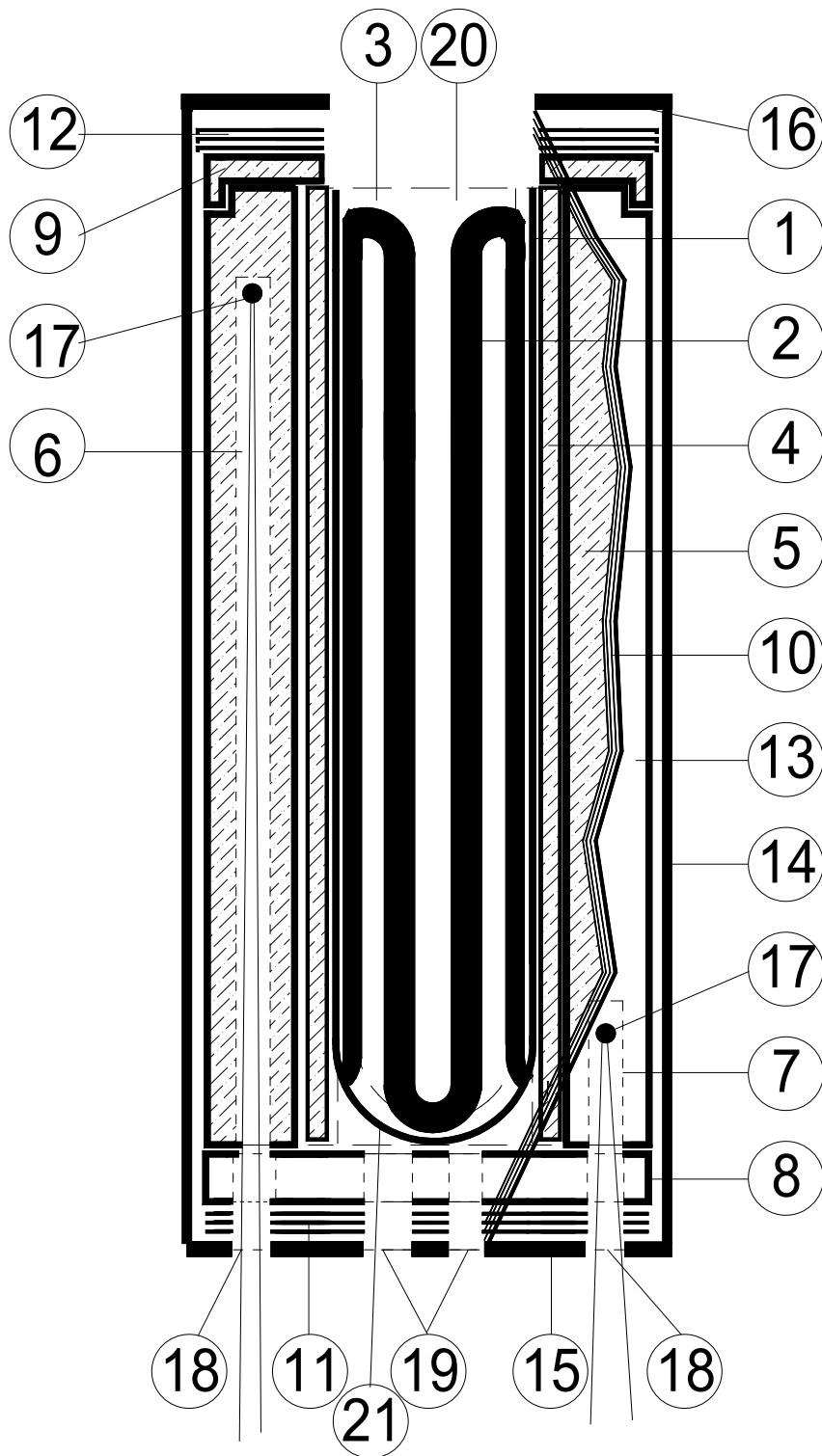


Fig. 1

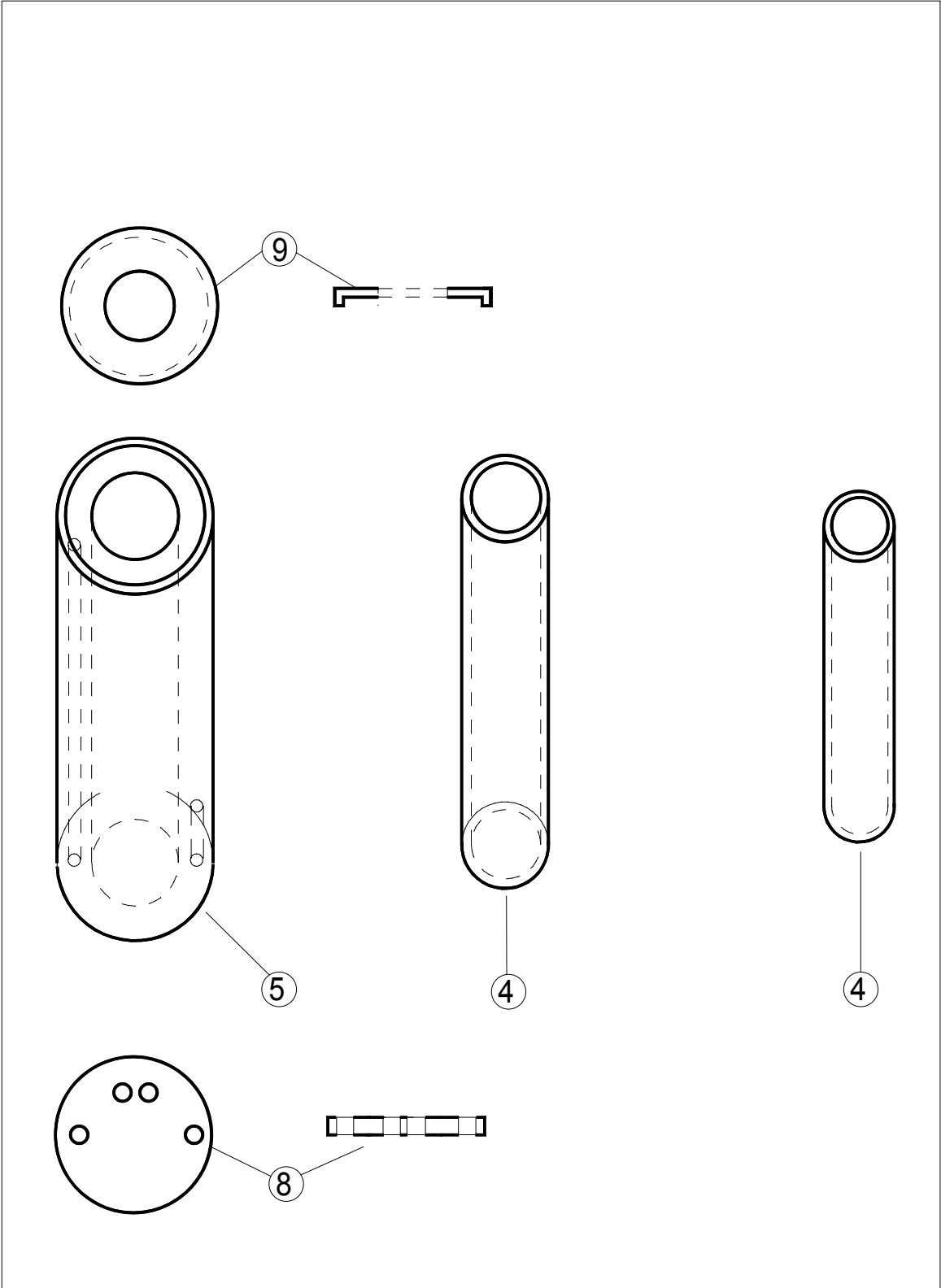


Fig.2