

(12)

DEMANDE DE BREVET EUROPEEN

(21) Numéro de dépôt: **88401405.1**

(51) Int. Cl.⁴: **H 05 H 1/30**

(22) Date de dépôt: **09.06.88**

(30) Priorité: **10.06.87 FR 8708096**

(43) Date de publication de la demande:
28.12.88 Bulletin 88/52

(84) Etats contractants désignés:
BE CH DE FR GB IT LI NL SE

(71) Demandeur: **L'AIR LIQUIDE, SOCIETE ANONYME POUR L'ETUDE ET L'EXPLOITATION DES PROCEDES GEORGES CLAUDE**
75, Quai d'Orsay
F-75321 Paris Cédex 07 (FR)

(72) Inventeur: **Labat, Jean-Luc**
Garden Heights, D-2-3-6 Komatsu - Tsuchiura-Shi
Ibaraki 300 (JP)

Ougarane, Lahcen
47, avenue des Tulipes
F-78990 Elancourt (FR)

Gastiger, Michel
4, avenue d'Orgeval
F-91400 Orsay (FR)

(74) Mandataire: **Jacobson, Claude et al**
L'AIR LIQUIDE, SOCIETE ANONYME POUR L'ETUDE ET L'EXPLOITATION DES PROCEDES GEORGES CLAUDE
75, quai d'Orsay
F-75321 Paris Cédex 07 (FR)

(54) **Torche à plasma micro-onde, dispositif comportant une telle torche et procédé pour la fabrication de poudre les mettant en oeuvre.**

(57) La présente invention concerne une torche à plasma micro-ondes caractérisée en ce qu'elle comporte au moins une conduite d'amenée de gaz (1,2) ; une cavité résonnante (3) formant autour de ladite conduite un manchon ouvert du côté de la sortie de ladite conduite et comportant une ouverture latérale (4) ; une structure coaxiale de transition perpendiculaire au manchon comportant d'une part un tube externe (5) raccordé à l'ouverture latérale (4) du manchon et d'autre part un organe interne (6) dont l'une des extrémités (20) est au contact de ladite conduite et dont l'autre extrémité est au contact de la face externe d'un guide d'onde (8) et porte une pièce de transition (7) disposée dans le guide d'ondes (8) ; ledit guide d'onde (8) d'alimentation en énergie micro-ondes à section rectangulaire et perpendiculaire à la structure coaxiale (5,6) étant pourvu d'une ouverture (27) où est raccordé le tube externe (5) de la dite structure ; des moyens d'alimentation en gaz de gainage dans le guide d'onde (8) et/ou la structure coaxiale (5,6) et/ou le manchon ; éventuellement des moyens d'accord ; et éventuellement des moyens d'allumage du

plasma.

Elle concerne également un dispositif et un procédé pour la fabrication de poudre.

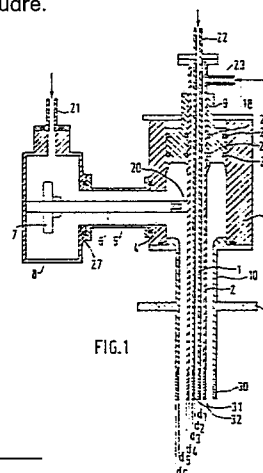


FIG.1

Description

"TORCHE A PLASMA MICRO-ONDE, DISPOSITIF COMPORTANT UNE TELLE TORCHE ET PROCEDE POUR LA FABRICATION DE POUDRE LES METTANT EN OEUVRE"

La présente invention concerne une torche à plasma micro-onde ainsi qu'un dispositif et un procédé pour la fabrication de poudre mettant en oeuvre une telle torche.

Il est connu de préparer des poudres par réaction de gaz réactifs au sein d'un plasma, ces procédés consomment cependant en général trop d'énergie.

La présente invention concerne une torche à plasma micro-onde caractérisé en ce qu'elle comporte au moins une conduite d'amenée de gaz ; une cavité résonnante formant autour de ladite conduite un manchon ouvert du côté de la sortie de ladite conduite et comportant une ouverture latérale ; une structure coaxiale de transition perpendiculaire au manchon comportant d'une part un tube externe raccordé à l'ouverture latérale du manchon et d'autre part un organe interne dont l'une des extrémités est au contact de ladite conduite et dont l'autre extrémité est au contact de la face interne d'un guide d'onde et porte une pièce de transition disposée dans le guide d'ondes ; ledit guide d'onde d'alimentation en énergie micro-ondes à section rectangulaire et perpendiculaire à la structure coaxiale étant pourvue d'une ouverture où est raccordé le tube externe de ladite structure ; des moyens d'alimentation en gaz de gainage dans le guide d'onde et/ou la structure coaxiale et/ou le manchon ; éventuellement des moyens d'accord ; et éventuellement des moyens d'allumage du plasma.

La présente invention sera mieux comprise au regard des figures annexées sur lesquels :

- la figure 1 représente une coupe latérale d'une torche selon l'invention dans son plan de symétrie ;
- la figure 2 représente une vue de face de la torche ;
- la figure 3 représente une vue de dessus de la torche ;
- la figure 4 représente une vue en coupe de la fenêtre d'étanchéité au gaz ;
- la figure 5 représente une vue schématique d'un dispositif selon l'invention.

Sur les figures 1,2 et 3 apparaît une conduite coaxiale d'amenée de gaz, la conduite intérieure 1 conduisant le gaz actif introduit par l'extrémité 22 reliée à une source de gaz non représentée. Par la conduite transversale 23 reliée à une source de gaz plasmagène non représenté arrive le gaz circulant dans la conduite extérieure 2 en matériau conducteur. La conduite coaxiale (1,2) est entourée d'un manchon métallique cylindrique de même axe faisant cavité de résonance 3 fermée du côté de l'arrivée des gaz par une bride 18 annulaire fixée sur le manchon 3 par des vis 19. Cette bride 18 est traversée par et vissée sur la tige creuse et extérieurement filetée d'un piston 9 couissant dans le manchon 3 et empruntée par la conduite 1,2. Des joints 25, 25', 26 et 26' toriques assurent l'étanchéité aux gaz.

Le manchon 3 comporte une ouverture latérale 4

sur laquelle est fixée perpendiculairement à joint étanche le tube externe métallique 5 de la structure de transition coaxiale. L'organe interne métallique 6 disposée sur l'axe de la structure coaxiale est d'une part au contact de la conduite externe 2, le contact étant réalisé par une pièce de contact 20 amovible et d'autre part au contact de la face interne de la paroi du guide d'ondes à section rectangulaire 8 opposée à l'ouverture 27 circulaire où est raccordée à joint étanche le tube externe 5 de la structure coaxiale. Le guide d'onde 8 est disposé perpendiculairement à la structure coaxiale et à l'axe de la conduite et du manchon 3. L'organe interne 6 est pourvu d'une pièce 7 d'accord non nécessairement fixe.

Dans le guide d'onde 8 débouche une canalisation 21 d'amenée de gaz de gainage. La cavité formant manchon 3 est prolongée par le manchon 10 disposé autour de la conduite 1,2 et qui porte une bride 17 de fixation.

Sur la figure 2 apparaît en outre sur le guide d'onde 8 les portions centrale 24 et les portions latérales 23-23', les doubles brides 12-13 fixées entre les brides 28 et 29 solidaires respectivement des portions 23-23' et 24 du guide d'onde 8.

Sur la figure 4 apparaît la structure de fenêtres comportant chacune deux brides 12 et 13 rectangulaires métalliques qui enserrant dans une évidement 15 une fenêtre 11 transparente aux ondes, par exemple en quartz.

L'étanchéité en gaz est assurée par des joints 14 en silicone disposés entre la fenêtre 11 et les surfaces en regard de la bride 12 et de l'évidement de la bride 13. La bride 13 comporte en outre une gorge et 16 où est disposé un joint rectangulaire métallique qui assure l'étanchéité au gaz de la portion centrale 24 du guide d'onde 8 par contact sur la bride 28.

De préférence, les arêtes et les angles vifs sont adoucis pour éviter l'arcage du plasma.

Dans une variante non représentée, la bride 18 n'est traversée en son centre que par la conduite 1,2 et le piston 9, intérieur au manchon et sans tige creuse, est déplacé dans le manchon par une ou plusieurs tiges traversant la bride 18.

Dans une autre variante non représentée, l'introduction de gaz de gainage a lieu dans le manchon 3 ou 10. L'étanchéité au gaz dans la torche peut être assurée par une pièce disposée dans la structure coaxiale par exemple, les fenêtres 12, 13 ne sont alors par nécessaires.

En outre, les moyens d'étanchéité au gaz ne sont pas nécessaires dans certaines applications de ces torches.

Est nécessaire par contre, un bon contact électrique entre toutes les parties conductrices qui guident les micro-ondes. A cet effet, leur jonction parfaitement conductrice entre les parties métalliques jointes par brides peut être assurée par des joints en cuivre ou en indium.

Dans une variante non représentée, la coaxialité

des conduites 1 et 2 est assurée au moyen de picots ou d'un ressort métallique disposé entre les deux conduites.

La conduite d'amenée de gaz n'est pas nécessairement coaxiale et peut n'être constituée que d'une conduite.

La longueur des conduites 1 et 2 peut-être modifiée en ligne par coulissement le long de l'axe. Ces longueurs et celle du manchon peuvent être en outre modifiées par l'adjonction d'embouts 30,31,32 vissés à leur extrémité et interchangeables.

Selon l'application de la torche, ces embouts peuvent être choisis dans un matériau adapté aux produits traités dans la torche, bon conducteurs à point de fusion élevé et de préférence réfractaire pour le manchon et la conduite extérieure, éventuellement aussi réfractaire pour la conduite 1 et non nécessairement conducteur.

De préférence, l'extrémité des conduites 1,2 et du manchon 10 ou des embouts vissés à leur extrémité est arrondie.

La présente invention concerne également en dispositif étanche pour la fabrication de poudre qui met en oeuvre une torche selon l'invention et comporte en outre un générateur micro-ondes, une torche à plasma micro-ondes, une enceinte réactionnelle, des moyens d'alimentation en gaz réactif, en gaz plasmagène et un gaz de gainage, des moyens de séparation de poudre et des gaz, des moyens de collection des poudres, et des moyens d'évacuation des gaz effluents.

Outre la cavité de résonance 43, le manchon 40 et le guide d'onde 48 qui correspondent à la cavité 3, au manchon 10 et au guide d'onde 8 représentés que les figures précédentes, le dispositif comporte un générateur de micro-ondes 41 relié par des moyens usuels au guide d'onde 48. Il comporte aussi des canalisations d'amenée de gaz de gainage 42, de gaz réactif 47 et de gaz plasmagène 46. Des moyens d'accord, par exemple des pistons peuvent être prévus sur le guide d'onde. D'autres moyens d'accord usuels sont également envisageables.

Le manchon 40 débouche et dépasse de D_1 dans l'enceinte réactionnelle 53 de longueur L et de diamètre D, dont l'extrémité opposée à une forme de cône d'angle de préférence environ égal à 20° .

Selon l'invention, le rapport L/D est compris entre 1,5 et 6, de préférence entre 2 et 4.

Pour éviter la contamination des poudres par le matériau de la paroi de l'enceinte, celle-ci peut être électropolie ou équipée d'une doublure en quartz.

L'enceinte réactionnelle débouche dans un séparateur de poudre et de gaz constitué d'un filtre cylindrique métallique 50 entouré d'un manchon 49 étanche et relié à une conduite d'évacuation des gaz 52. A la sortie du filtre cylindrique 50 est disposé un collecteur de poudre 51 des vannes et une alimentation 56 de gaz de purge et une conduite de mise sous vide 55 sont en outre prévues pour faciliter le changement de collecteur sans contamination des poudres. D'autres moyens usuels de séparation de poudre et de gaz sont envisageables.

Le dispositif d'allumage 54 permet d'allumer le plasma par contact électrique avec la conduite de gaz.

Le moyens d'allumage du plasma ne sont pas nécessairement choisis tels que représentés. Ils peuvent être constitués par tout moyen d'allumage usuel au niveau de l'extrémité de la conduite, par tout moyen extérieur compatible avec la structure de l'enceinte. Il peut être en particulier réalisé au moyen d'un fil métallique introduit dans la conduite 2 et amovible ou non une fois le plasma allumé.

Dans un autre mode de réalisation non représenté, le gaz de gainage peut être introduit au niveau du manchon 40 ou de la cavité 43 ou du coaxial (qui n'apparaît pas sur la figure 5) et le gaz plasmagène par l'organe interne de la transition coaxiale qui débouche dans ce cas dans la conduite externe 2 pour y conduire le gaz plasmagène.

Dans un autre mode de réalisation, on peut prévoir d'autres modes usuels de récupération des poudres et des gaz à la sortie de l'enceinte réactionnelle. Les gaz résiduels peuvent être séparés, détruits pour certains toxiques et recyclés pour d'autres (plasmagène, de gainage).

Dans un autre mode de fonctionnement, la torche dans laquelle les gaz dans la configuration représentée ici circulent du haut vers le bas, peut être orientée de façon différente, par exemple orientée du bas vers le haut.

Le dispositif selon l'invention s'applique notamment à la synthèse de poudre, c'est pourquoi la présente invention concerne également un procédé pour la préparation de poudre caractérisé en ce que l'on utilise un dispositif selon l'invention et en ce que le gaz réactif est choisi parmi les silanes, l'ammoniac, les hydrures de bore, les halogénures de tungstène et de titane, l'oxygène et les organo métalliques gazeux et leurs mélanges.

Le procédé selon l'invention s'applique en particulier à la préparation de poudre à base de silicium, à savoir poudre de silicium, de silice, de carbure et nitrure de silicium.

Le gaz réactif est alors selon l'invention choisi parmi les silanes et polysilanes, halogéno silanes, alkylsilanes et leur mélange à l'oxygène et à l'ammoniac.

Le gaz de gainage circule in fine, où que soit la conduite d'alimentation, entre le manchon et la conduite externe 2. On peut utiliser tout gaz de gainage usuel, et en particulier des gaz inertes comme l'azote, ou l'hydrogène par exemple.

Le gaz plasmagène utilisé est un gaz plasmagène classique, en particulier l'argon.

Il est injecté et circule dans la conduite extérieure. Le gaz actif circule dans la conduite interne ou dans la conduite unique quand ce mode de réalisation est utilisé. Dans ce cas, du gaz plasmagène peut être injecté à l'allumage puis remplacé par ou mélangé à du gaz actif.

Selon l'invention, la pression d'utilisation est de l'ordre de la pression atmosphérique ou supérieur à celle-ci, jusqu'à 5 atmosphères environ.

Par micro-onde, on entend la bande allant d'environ 400 à 12000 MHz.

Exemple 1.

La demanderesse a mis en oeuvre l'invention dans

les conditions suivantes :

- $L/D = 2,5$; D_1 compris entre $D/4$ et $3 D/4$, de préférence $0,4 D$.

- $D/d_1 =$ compris entre 40 et 150, de préférence 100.

- $d_1 = 2$ mm (diamètre interne de la conduite 1)

- $d_2 = 4$ mm (diamètre externe de la conduite 1)

- $d_3 = 7,5$ mm (diamètre interne de la conduite 2)

- $d_4 = 12$ mm (diamètre externe de la conduite 2)

- $d_5 = 27$ mm (diamètre interne du manchon 10)

- $d_6 = 33$ mm (diamètre externe du manchon 10)

- la conduite 1 a un embout en quartz

- la conduite 2 a un embout en tungstène

- le manchon 10 a un embout en laiton

- le réacteur est en inox 316 L - (la température de référence interne est 440°C).

- gaz réactif : SiH_4 7l/mn

- gaz plasmagène : Ar 3l/mn

- gaz de gainage : N_2 11l/mn

- puissance μ -onde 2,5 Kw

- production = 490 g/h de poudre de silicium soit un rendement énergétique de 5,15 Kwh/kg de poudre et 7,90 KWh électrique/kg de poudre (conversion 100%, rendement ou générateur 66%).

On a étiré un monocristal à partir des poudres obtenues ainsi. L'analyse du monocristal a révélé $7 \cdot 10^{17}$ atome/cm³ d'oxygène et $10 \cdot 10^{17}$ atome/cm³ de carbone.

Exemple 2

Avec le même réacteur et les débits suivants :

SiH_4 9,5 l/mn

Ar 3 l/mn

N_2 14 l/mn

pour une puissance de 3,125 KW, on a obtenu 665 g/h de poudre de silicium soit un rendement de 4,69 KWh μ -onde/kg poudre et 7,20 KW/h électrique/kg poudre (conversion 100%)

Exemple 3.

Avec le même réacteur (et $d_5 = 25$ mm)

et les débits suivants :

SiH_4 : 12 l/mn

Ar : 2,5l/mn

N_2 : 12 l/mn

pour une puissance de 3,2 KW, on a obtenu 840 g/h de poudre de silicium, soit un rendement de 3,81 KWh/kg de poudre et 5,86 KWh électrique/kg poudre (conversion 98,3 %).

Les diamètres d_1 à d_6 sont définis sur la figure 1.

Revendications

1.- Torche à plasma micro-onde, caractérisée en ce qu'elle comporte au moins une conduite d'amenée de gaz (1,2) ; une cavité résonnante (3) formant autour de ladite conduite un manchon ouvert du côté de la sortie de ladite conduite et comportant une ouverture latérale (4) ; une structure coaxiale de transition

perpendiculaire au manchon comportant d'une part un tube externe (5) raccordé à l'ouverture latérale (4) du manchon et d'autre part un organe interne (6) dont l'une des extrémités (20) est au contact de ladite conduite et dont l'autre extrémité est au contact de la face externe d'un guide d'onde (8) et porte une pièce de transition (7) disposée dans le guide d'ondes (8) ; ledit guide d'onde (8) d'alimentation en énergie micro-ondes à section rectangulaire et perpendiculaire à la structure coaxiale (5,6) étant pourvu d'une ouverture (27) où est raccordé le tube externe (5) de la dite structure ; des moyens d'alimentation en gaz de gainage dans le guide d'onde (8) et/ou la structure coaxiale (5,6) et/ou le manchon ; éventuellement des moyens d'accord ; et éventuellement des moyens d'allumage du plasma.

2.- Torche à plasma selon la revendication 1, caractérisée en ce que le tube externe (5) est raccordé de façon étanche à l'ouverture latérale (4) et/ou au guide d'onde (8).

3.- Torche à plasma selon la revendication 1 ou 2, caractérisée en ce que le guide d'onde (8) est relié à une source (21) de gaz de gainage et est muni de part et d'autre de la pièce de transition (7) de moyens d'étanchéité au gaz.

4.- Torche selon l'une des revendications 1 à 3, caractérisée en ce que les moyens d'étanchéité (11,12,13) au gaz sont conducteurs et comportent au moins une fenêtre rectangulaire (11) en matériau transparent aux micro-ondes, deux brides rectangulaires (12,13) enserrant la fenêtre, des moyens d'étanchéité au gaz (14,15) entre la fenêtre et les brides, et des moyens d'étanchéité (16) au gaz entre la bride (13) située en regard de la portion (24) du guide d'onde étanche au gaz et ladite bride.

5.- Torche à plasma selon la revendication 1 ou 2, caractérisée en ce que le manchon (3) est relié à une source de gaz de gainage et la structure coaxiale (5,6) est muni de moyens d'étanchéité au gaz.

6.- Torche selon l'une des revendications 1 à 5, caractérisée en ce que l'extrémité fermée du manchon est une bride annulaire traversée à joint étanche par des moyens de réglage d'un piston annulaire (9), la bride et le piston étant traversés par la conduite d'amenée de gaz (1,2).

7.- Torche selon l'une des revendications 1 à 6, caractérisée en ce que la conduite d'amenée (1,2) de gaz est coaxiale.

8.- Torche selon l'une des revendications 1 à 7, caractérisée en ce que les longueurs de la conduite d'amenée de gaz et de la sortie du manchon sont réglables.

9.- Torche selon l'une des revendications 1 à 8, caractérisée en ce que l'extrémité (30,31,32) de la conduite d'amenée de gaz et de la sortie du manchon sont arrondies.

10.- Torche à plasma selon l'une des revendications 1 à 9, caractérisée en ce que la pièce de transition (7) est réglable.

11.- Torche à plasma selon l'une des revendi-

cations 1 à 10, caractérisée en ce que la conduite d'arrivée est coaxiale, la conduite intérieure étant constitué au moins en partie d'un matériau réfractaire.

12.- Dispositif étanche à plasma micro-onde pour la fabrication de poudre, du type comportant un générateur micro-ondes (41), une torche à plasma micro-ondes (40,43,48), une enceinte réactionnelle (53), des moyens d'alimentation en gaz réactif (46), en gaz plasma-gène (47) et un gaz de gainage (42), des moyens de séparation de poudre et des gaz, des moyens de collection des poudres (51), et des moyens d'évacuation des gaz effluents (52), caractérisé en ce que la torche à plasma est réalisée selon l'une des revendications 1 à 10.

13.- Dispositif étanche selon la revendication 12, caractérisé en ce que le rapport de la longueur et du diamètre de l'enceinte réactionnelle est compris entre 1,5 et 6, de préférence 2 et 4.

14.- Procédé de préparation de poudre, caractérisé en ce que l'on utilise un dispositif selon l'une des revendications 1 à 13 et en ce que le gaz réactif est choisi parmi les silanes, l'ammoniac, les hydrures de bore, les halogènes de Tungstène et de Titane, l'oxygène et les organo métalliques gazeux et leurs mélanges.

15.- Procédé de préparation de poudre, selon la revendication 14, caractérisé en ce que la pression d'utilisation est supérieure ou égale à la pression atmosphérique.

5

10

15

20

25

30

35

40

45

50

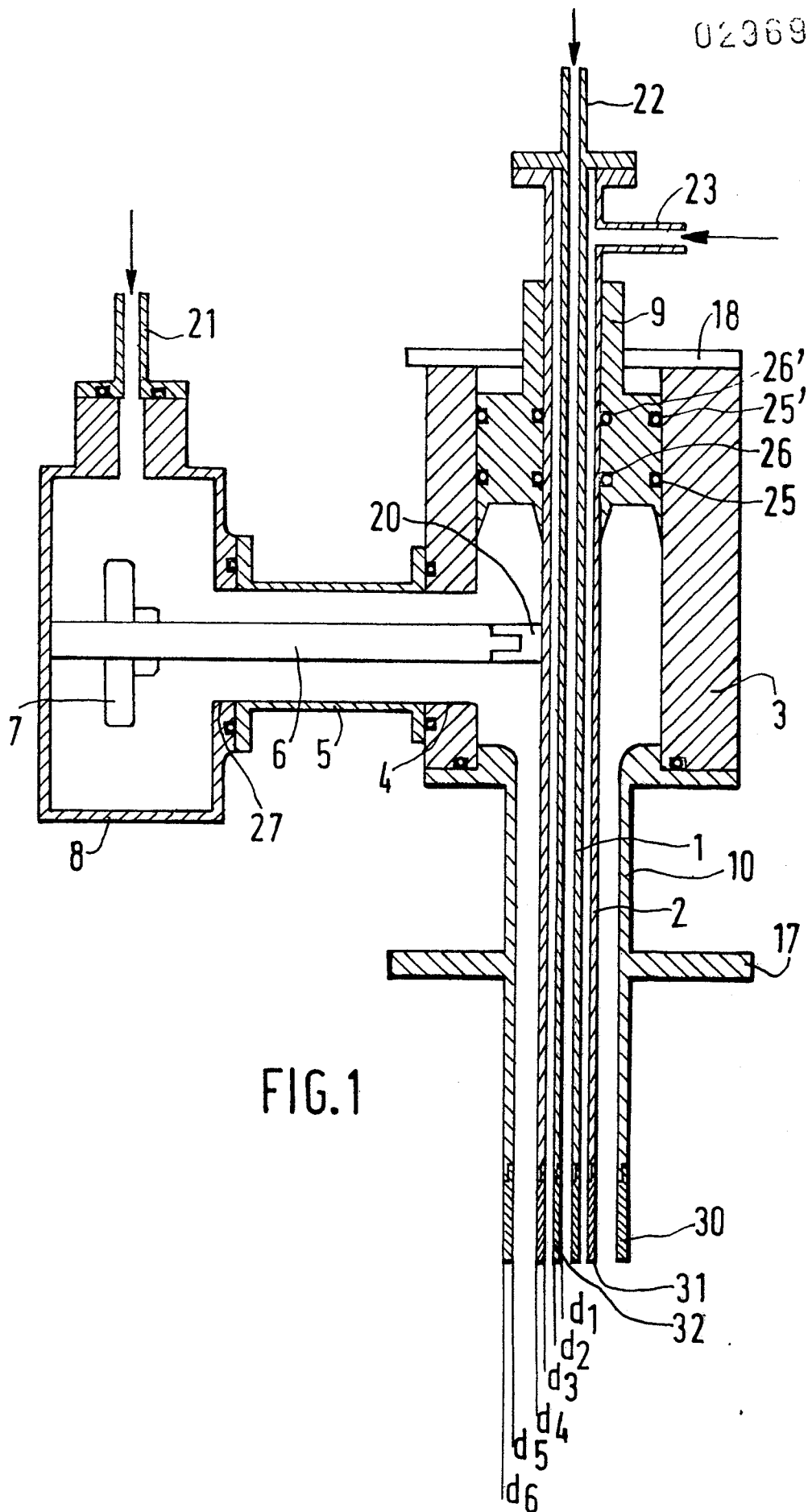
55

60

65

5

0296921



25 08 88

0236921

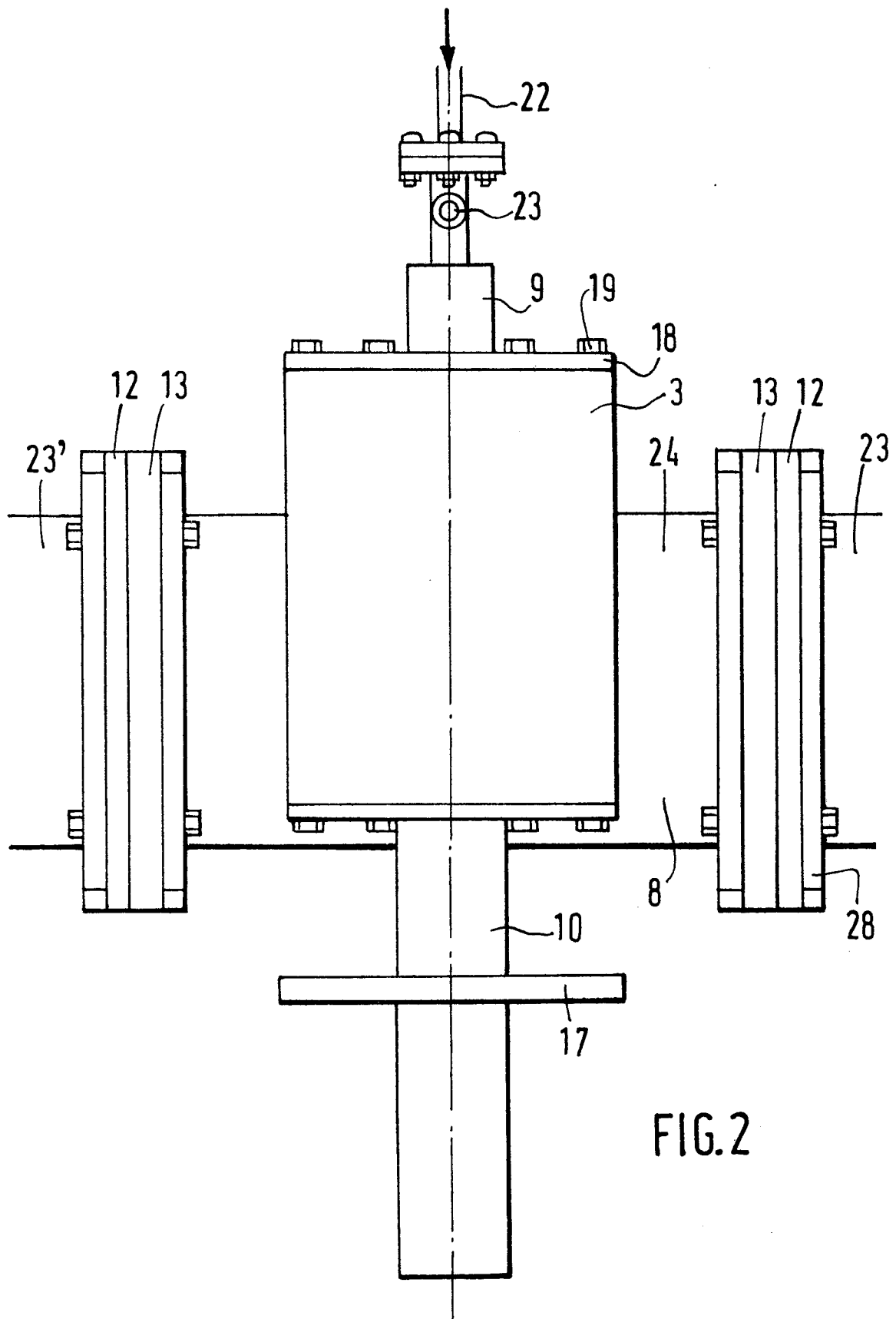


FIG. 2

0296321

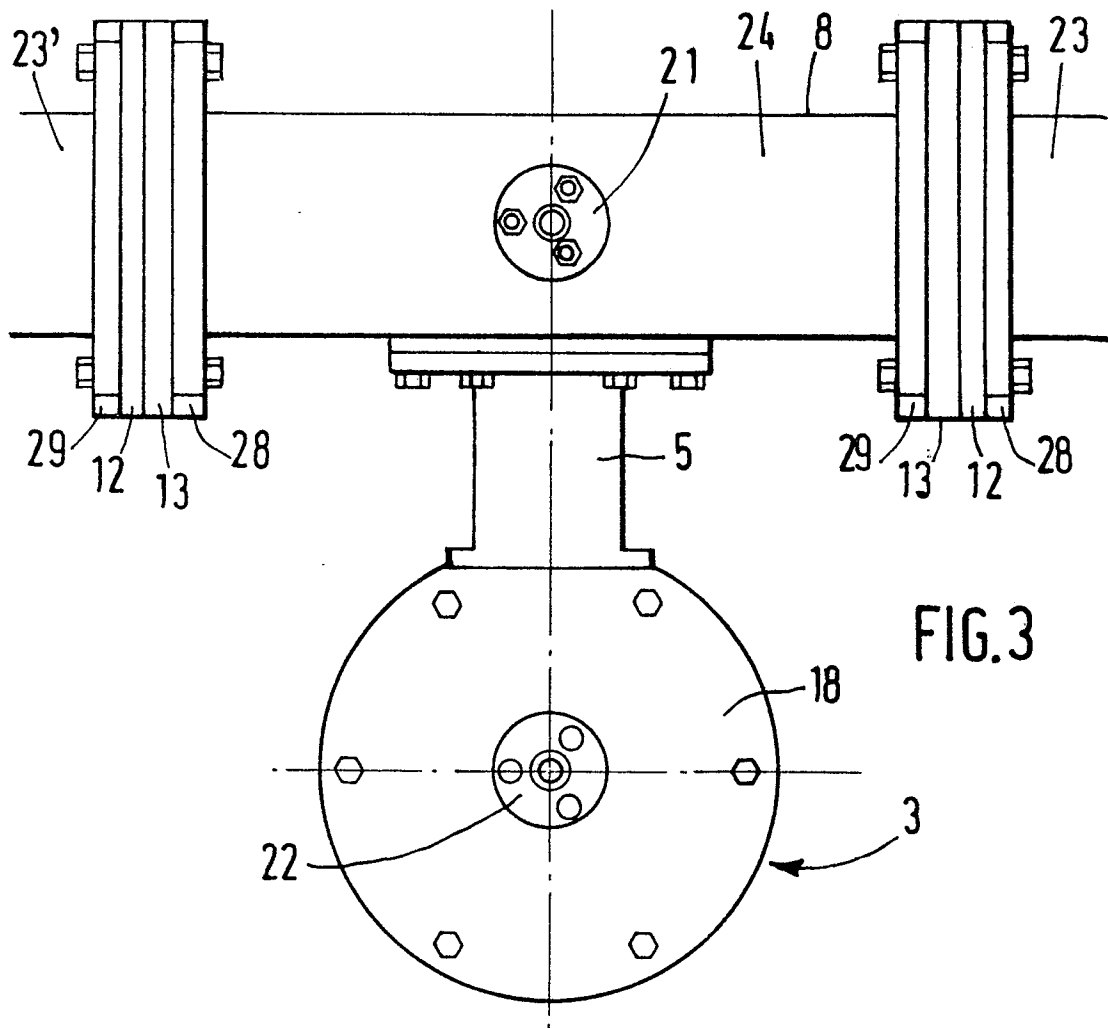


FIG. 3

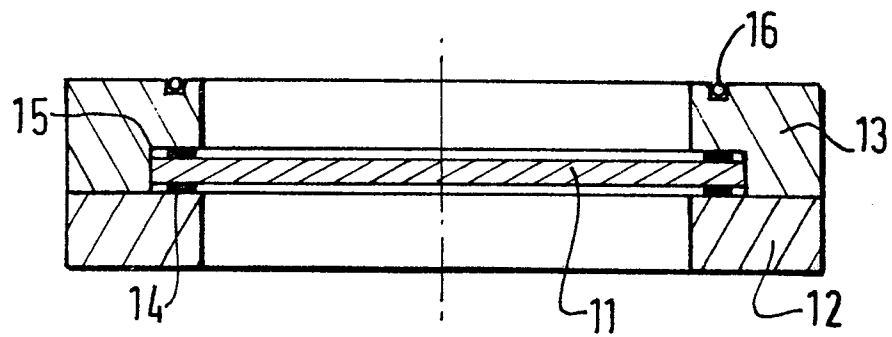


FIG. 4

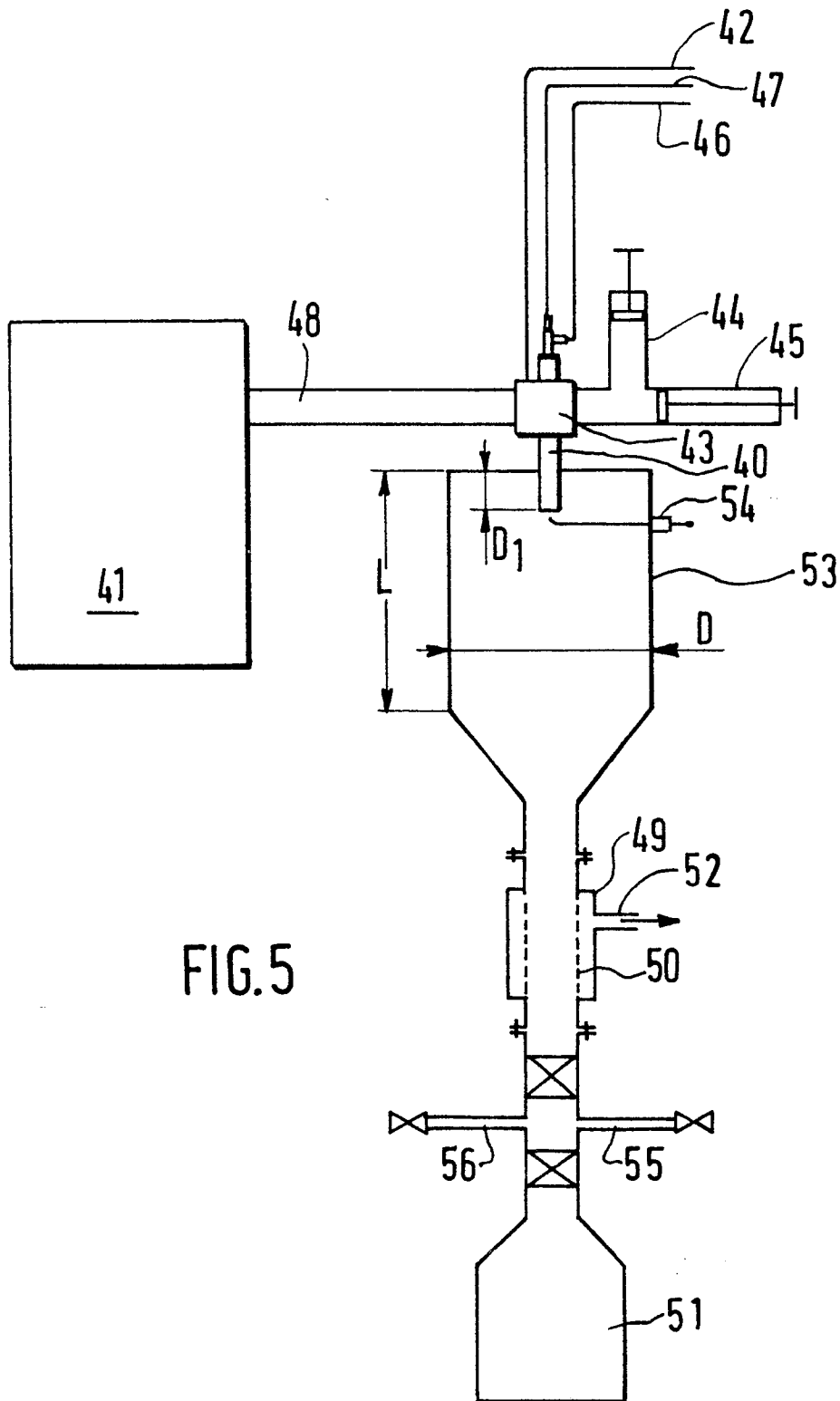


FIG.5



Office européen
des brevets

RAPPORT DE RECHERCHE EUROPEENNE

Numero de la demande

EP 88 40 1405

DOCUMENTS CONSIDERES COMME PERTINENTS			
Catégorie	Citation du document avec indication, en cas de besoin, des parties pertinentes	Revendication concernée	CLASSEMENT DE LA DEMANDE (Int. Cl.4)
A	DE-A-2 336 050 (KESSLER) * Figures 1,2; page 4, alinéa 7; page 5, alinéa 3 * ---	1,2,6-8,11	H 05 H 1/30
A	ELEKTRONISCHE RUNDSCHAU, vol. 13, no. 11, novembre 1959, pages 404-406; W. SCHMIDT: "Der Mikrowellen-Plasmabrenner" ---		
A	DE-A-3 134 501 (CEBANKOV et al.) * Figure 2; page 12, alinéa 4 - page 13, en bas * -----	12,14	
			DOMAINES TECHNIQUES RECHERCHES (Int. Cl.4)
			H 05 H
Le présent rapport a été établi pour toutes les revendications			
Lieu de la recherche LA HAYE		Date d'achèvement de la recherche 15-09-1988	Examineur FRITZ S.C.
CATEGORIE DES DOCUMENTS CITES X : particulièrement pertinent à lui seul Y : particulièrement pertinent en combinaison avec un autre document de la même catégorie A : arrière-plan technologique O : divulgation non-écrite P : document intercalaire T : théorie ou principe à la base de l'invention E : document de brevet antérieur, mais publié à la date de dépôt ou après cette date D : cité dans la demande L : cité pour d'autres raisons & : membre de la même famille, document correspondant			