

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第4974362号
(P4974362)

(45) 発行日 平成24年7月11日 (2012. 7. 11)

(24) 登録日 平成24年4月20日 (2012. 4. 20)

(51) Int. Cl.

F 1

C 2 3 C 14/34 (2006. 01)

C 2 3 C 14/34 A

C 2 2 C 27/02 (2006. 01)

C 2 2 C 27/02 1 0 3

C 2 2 F 1/18 (2006. 01)

C 2 2 F 1/18 G

B 2 1 J 1/02 (2006. 01)

B 2 1 J 1/02

B 2 1 J 1/06 (2006. 01)

B 2 1 J 1/06

請求項の数 6 (全 14 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2007-100772 (P2007-100772)
 (22) 出願日 平成19年4月6日 (2007. 4. 6)
 (65) 公開番号 特開2007-302996 (P2007-302996A)
 (43) 公開日 平成19年11月22日 (2007. 11. 22)
 審査請求日 平成22年3月3日 (2010. 3. 3)
 (31) 優先権主張番号 特願2006-110513 (P2006-110513)
 (32) 優先日 平成18年4月13日 (2006. 4. 13)
 (33) 優先権主張国 日本国 (JP)

(73) 特許権者 000231464
 株式会社アルバック
 神奈川県茅ヶ崎市萩園2500番地
 (74) 代理人 110000305
 特許業務法人青莪
 (72) 発明者 佐藤 元則
 千葉県山武市横田516 アルバックマテ
 リアル株式会社内
 (72) 発明者 金 豊
 千葉県山武市横田516 アルバックマテ
 リアル株式会社内
 (72) 発明者 伊藤 学
 千葉県山武市横田516 アルバックマテ
 リアル株式会社内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 T a スパッタリングターゲットおよびその製造方法

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

T a インゴットの鍛造において、「締め鍛造と据え込み鍛造とを交互に3回以上繰り返して行う冷間鍛造工程」を1回の鍛造パターンとして、該T a インゴットに対してこの鍛造パターンを3回以上実施し、かつ、各鍛造パターンの間にそれぞれ第1の真空熱処理を実施してT a ビレットを準備し、このT a ビレットを4軸以上の方向で、かつ、総圧延率65～75%で冷間圧延した後、その圧延板を850℃～950℃の範囲で第2の真空熱処理してT a スパッタリングターゲットを製造することを特徴とするT a スパッタリングターゲットの製造方法。

【請求項 2】

前記T a インゴットとして、アスペクト比(長さ/直径)=0.7～1.5のインゴットを使用することを特徴とする請求項1記載のT a スパッタリングターゲットの製造方法。

【請求項 3】

前記締め鍛造と据え込み鍛造時のインゴット形状の変化は、アスペクト比(長さ/直径)=0.7～1.5の範囲で行うことを特徴とする請求項1又は2記載のT a スパッタリングターゲットの製造方法。

【請求項 4】

前記T a インゴットとしては、Al、Cr、Fe、Ni、Ti、Na、Mg、K、Si、Cu、Co、Nb、W、Mo、U、およびThの不純物含有量の合計が50ppm以下であり、かつ、C、N、Oの各々が50ppm以下であるインゴットを用いることを特徴

10

20

とする請求項 1 ～ 3 のいずれか 1 項に記載の Ta スパッタリングターゲットの製造方法。

【請求項 5】

前記請求項 1 ～ 4 のいずれか 1 項に記載の製造方法に従って製造され、結晶組織として 30 ～ 50 μm の平均結晶粒径を有し、かつ結晶粒径の標準偏差が 30 μm 以下であることを特徴とする Ta スパッタリングターゲット。

【請求項 6】

前記 Ta スパッタリングターゲットにおいては、Al、Cr、Fe、Ni、Ti、Na、Mg、K、Si、Cu、Co、Nb、W、Mo、U、および Th の不純物含有量の合計が 50 ppm 以下、かつ、C、N、O の各々が 50 ppm 以下含有されていることを特徴とする請求項 5 記載の Ta スパッタリングターゲット。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、薄膜形成技術であるスパッタリング法に供されるスパッタリングターゲットおよびその製造方法に関し、特に均一な微細結晶組織を有する Ta スパッタリングターゲットおよびその製造方法に関するものである。

【背景技術】

【0002】

従来から、半導体分野においては、配線膜と絶縁膜との間にバリアメタル膜を設けているが、このバリアメタル膜はスパッタリング法等により薄膜として形成される。そのため、バリアメタル膜は、より薄く均一な厚みで成膜されることが要望されている。そのため、バリアメタル膜形成のためのスパッタリングターゲットには、スパッタ膜の面内均一性およびスパッタ時のパーティクル発生抑制のため、構成金属の結晶粒径の微細化、均一性が求められる。Cu 配線膜を用いる場合には、バリアメタル膜形成用に Ta を用いることが知られている。Ta バリアメタル膜を形成するための Ta スパッタリングターゲットについても、Ta の平均結晶粒径の微細化および結晶粒径の場所によるばらつきを抑えることがパーティクル発生やシート抵抗のばらつき等を抑えるのに有効である。

【0003】

そのため、Ta スパッタリングターゲットの結晶組織を微細化し、その平均結晶粒径を小さくし、そのばらつきを抑える製造方法について種々の検討がなされている。一般的に、金属材料の結晶組織を均一かつ微細化するためには、塑性加工時の加工量(加工率)はできるだけ大きく、その後の熱処理条件を選択して結晶粒径の粗大化を抑制する。Ta スパッタリングターゲットの製造方法に関しては、大別して次の方法の報告がなされている。

(1) 締め鍛造と据え込み鍛造とを組み合わせる加工量を大きくした鍛造スラブ(ビレット)を準備し、このスラブ(ビレット)を真空熱処理した後、冷間圧延を行い、その圧延板を真空熱処理する方法。

(2) 2 回以上のこねくり鍛造と真空熱処理とを組み合わせたスラブ又はビレットを準備し、クロス圧延した後にその圧延板を真空熱処理する方法。

(例えば、特許文献 1、2、3 および 4 参照)。

【0004】

しかし、これらの方法に従って Ta スパッタリングターゲットを試作したが、結晶組織の微細化および平均結晶粒径のばらつきの小さいターゲットを得るには、必ずしも十分な方法でなかった。この原因について調査を行ったところ、次のようなことが原因であることがわかった。

(1) 鍛造条件が不適切でビレット(スラブ)の結晶組織が均一でないこと。

(2) 圧延時の圧延率が適切でないこと(圧延率が小さいこと)。

(3) 圧延板の熱処理条件が適切でなかったこと。

【0005】

ビレットの結晶組織の均一性が得られなかった原因は、(1)～(3)のことが考えられる。

10

20

30

40

50

- (1) インゴットの形状(アスペクト比が大きすぎる或いは小さすぎる)
- (2) 使用設備(鍛造に用いるプレスの荷重が小さい)
- (3) 鍛造方法(軸が少ない或いは繰り返し回数が少ない)

例えば、インゴットの長さLもしくは鍛造変形時の長さLが直径 ϕ に対して0.5倍～0.6倍以下になると、締め鍛造で力が中央まで伝わりにくいため、外周に近い側(以下、「外周部」と称す)に対して中央付近が凹状になりやすい。結果的に、外周部と中央部とで結晶組織の均一性は乏しくなってしまう。これが酷いときには、中央付近の凹状は、その後に据え込み鍛造を行ってもビレットの厚みによっては残ってしまい、歩留まりを低下させてしまう原因にもなる。また、インゴットの長さLもしくは鍛造変形時の長さLが直径 ϕ に対して1.5倍～2.0倍以上になると、据え込み鍛造の際に挫屈、たわみが生じやすくなる、結局、インゴットもしくは鍛造変形時のアスペクト比(直径/長さ)が適当でない場合は、冷間鍛造で安定的な生産ができず、結晶組織の均一性が達成できないことや歩留まり低下という問題が生じる。

10

【0006】

一般的なスパッタリングターゲットは、鍛造後のビレットを圧延、熱処理する工程を経て得られるが、結晶組織の均一性の高いビレットを供しても、その後の圧延時の圧延率が低いと、その後の熱処理で均一かつ微細な結晶組織が得られない。一方、結晶組織の均一性の高いビレットを供しても、圧延率が高すぎると、その後の熱処理で結晶粒の粗大化が進みやすいという問題もある。

20

【特許文献1】特開平11-80942号公報(特許請求の範囲等)

【特許文献2】特開2004-107758号公報(特許請求の範囲等)

【特許文献3】特開2004-526863号公報

【特許文献4】特表2002-530534号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0007】

本発明の課題は、上述の従来技術の問題点を解決すること、すなわち歩留まりを低下させず結晶組織の均一性を向上せしめ、その後の圧延時の圧延率と真空熱処理との組み合わせ条件を最適化することにより、微細かつ均一な結晶組織を有するTaスパッタリングターゲットおよびその製造方法を提供することにある。

30

【課題を解決するための手段】

【0008】

本発明のTaスパッタリングターゲットの製造方法では、Taインゴットの鍛造において、「締め鍛造と据え込み鍛造とを交互に3回以上繰り返して行う冷間鍛造工程」を1回の鍛造パターンとして、該Taインゴットに対してこの鍛造パターンを3回以上実施し、かつ、各鍛造パターンの間にそれぞれ第1の真空熱処理を実施してTaビレットを準備し、このTaビレットを4軸以上の方向で、かつ、総圧延率65～75%で冷間圧延した後、その圧延板を850℃～950℃の範囲で第2の真空熱処理して均一かつ微細な結晶組織を有するTaスパッタリングターゲットを得ることを特徴とする。この圧延が2軸方向、3軸方向で行われると、円形状が得にくくなる。総圧延率が65%未満であると、その圧延板の真空熱処理で均一かつ微細な結晶組織が得られず、総圧延率が75%を超えると、その圧延板の真空熱処理で結晶粒の粗大化が進みやすくなる。また、熱処理温度が850℃未満であると、再結晶組織が得られず、950℃を超えると、結晶粒の粗大化が起る部分が現れ、結晶組織の均一性が得られない。

40

【0009】

前記製造方法において、Taインゴットの形状として、アスペクト比(長さ/直径)=0.7～1.5の範囲内のインゴットを使用することを特徴とする。このような範囲内のアスペクト比(長さ/直径)を有するTaインゴットを用いることにより、鍛造時の不均一な変形を抑え、全体に歪みを加えることができ、Taビレットの歩留まりを低下させず、Taビレットの結晶組織の均一性が向上する。このアスペクト比が0.7未満であると、締

50

め鍛造の際に、外周部と中央部との変形の違いで、直径の中央部分は凹みになりやすくなり、結果的に結晶組織の均一性等が不十分なT aビレットになりやすい。逆にアスペクト比が1.5を超えると、据え込み鍛造の際に、座屈、たわみが生じやすく、安定的にビレットを生産できない。

【0010】

前記締め鍛造と据え込み鍛造とにおけるインゴットの変形の範囲は、アスペクト比(長さ/直径)=0.7~1.5の範囲で行われることを特徴とする。インゴットの変形の範囲を、このようなアスペクト比(長さ/直径)の範囲内にすることにより、鍛造時の不均一な変形を抑え、全体に歪みを加えることができるため、T aビレットの歩留まりを低下させず、T aビレットの結晶組織の均一性が向上する。インゴットの変形の範囲が、アスペクト比(長さ/直径)が0.7未満で行われると、結果的に結晶組織の均一性等が不十分なビレットになりやすく、また、アスペクト比(長さ/直径)が1.5を超えると、座屈、たわみが生じやすく安定的にビレットを生産できない。

10

【0012】

前記T aインゴットとして、Al、Cr、Fe、Ni、Ti、Na、Mg、K、Si、Cu、Co、Nb、W、Mo、U、およびThの不純物含有量の合計が50ppm以下であり、かつ、C、N、Oの各々が50ppm以下であるインゴットを用いることを特徴とする。このように純度の高いT aインゴットを用いた場合でも、結晶粒径の微細化および結晶粒径のばらつきの小さいT aスパッタリングターゲットが製造できる。

20

【0013】

本発明のT aスパッタリングターゲットは、前記製造方法に従って製造され、結晶組織として30~50 μ mの平均結晶粒径を有し、かつ結晶粒径の標準偏差が30 μ m以下であることを特徴とする。かくして得られるT aスパッタリングターゲットは、Al、Cr、Fe、Ni、Ti、Na、Mg、K、Si、Cu、Co、Nb、W、Mo、U、およびThの不純物含有量の合計が50ppm以下であり、かつ、C、N、Oの各々が50ppm以下であることを特徴とする。このT aスパッタリングターゲットは、結晶粒径のばらつきが小さいものである。

【発明の効果】

【0014】

本発明によれば、鍛造では歩留まりを低下させずにビレットの結晶組織の均一性が向上し、また、そのビレットの圧延時の総圧延率と真空熱処理との組み合わせ条件を最適化することにより、微細かつ均一な結晶組織を有するT aスパッタリングターゲットおよびその製造方法を提供できるという効果を奏する。

30

【発明を実施するための最良の形態】

【0015】

本発明のT aスパッタリングターゲットの製造方法によれば、T aインゴットを鍛造するに際し、所定の冷間鍛造工程からなる鍛造パターンを3回以上実施し、かつ、各鍛造パターンの間に、それぞれ真空熱処理を実施してT aビレットが準備される。この鍛造パターンは、「締め鍛造と据え込み鍛造とを交互に3回以上繰り返して行う冷間鍛造工程」からなるものであり、この締め鍛造および据え込み鍛造の順序は、いずれが先に行われても良い。

40

【0016】

本発明によれば、投入材としてのT aインゴットとして、アスペクト比(長さ/直径)=0.7~1.5の形状のインゴットを使用し、締め鍛造と据え込み鍛造とにおけるインゴットの変形の範囲は、アスペクト比(長さ/直径)=0.7~1.5の範囲で行う。このように、投入材の形状および変形の範囲は、アスペクト比(長さ/直径)=0.7~1.5の範囲で行う。締め鍛造と据え込み鍛造とを、合計3回以上、好ましくは合計3回~5回程度繰り返す1サイクルの鍛造パターンを3回以上行い、かつ、その各鍛造パターン間において真空熱処理(第1の真空熱処理)を行う。この真空熱処理により、鍛造中のT aインゴットの割れを防止し、得られるT aビレットの結晶組織の均一化と同時に歩留まりを向

50

上させることができる。この場合の真空熱処理は、 1.3×10^{-2} Pa 以下、 $1050^{\circ}\text{C} \pm 50^{\circ}\text{C}$ 程度で実施することが好ましい。かくして得られた Ta ビレットを用いて所定の圧延率で、特定の真空熱処理条件 (1.3×10^{-2} Pa 以下、 $850 \sim 950^{\circ}\text{C}$) で真空熱処理 (第2の真空熱処理) することにより、結晶組織として平均結晶粒径 $30 \sim 50 \mu\text{m}$ であり、結晶粒径のばらつきの小さい微細かつ均一な結晶組織を有する Ta スパッタリングターゲットを得ることができる。

【0017】

本発明によれば、金属材料の均一な微細結晶組織を得るための鍛造、圧延、熱処理工程における従来技術の問題が解決される。すなわち、上記したように、最終製品の形状を得るのに必要な重量と素材のインゴット形状を考慮した上で、鍛造においては、インゴット (投入材) を所定のアスペクト比 (長さ/直径 = $0.7 \sim 1.5$) に設定したものを締め鍛造と据え込み鍛造とにおける変形の範囲をアスペクト比 (長さ/直径 = $0.7 \sim 1.5$) で交互に複数回繰り返す。

10

【0018】

しかし、このときの締め鍛造と据え込み鍛造との繰り返し回数が多すぎると鍛造中に割れが発生しやすくなり、逆に回数が少ないと鍛造効果が薄れるため、交互に行う回数は、前記したように、合計3回以上、好ましくは合計3回から5回程度繰り返すことにする。この鍛造工程を1サイクルの鍛造パターンとして、この鍛造パターンを3回以上繰り返すことが好ましい。なお、加工硬化による鍛造割れの防止とビレットの結晶組織の均一化のため、前記した真空熱処理を各鍛造パターンの間に実施する。この真空熱処理により鍛造中の割れの問題を防止することができるため、鍛造回数を減らすことなく、ビレットの結晶組織の均一性が高められる。この鍛造パターンは、鍛造パターン間で真空熱処理を行いながら2回よりも3回以上繰り返すことで、さらにビレットの結晶組織の均一性は向上する。

20

【0019】

一般に、Ta スパッタリングターゲットは、ビレット (スラブ) を圧延などで厚みを薄くすることで得られるが、その時の冷間加工率が高くなり過ぎると、均一かつ微細な結晶組織を得るための最適な真空熱処理条件の範囲が狭くなる。そのため、均一かつ微細な結晶組織を得るためには、冷間圧延時の圧延率は $65 \sim 75\%$ 程度に抑え、かつ、熱処理温度は 850°C から 950°C までに設定することが望ましい。かくして、前記した鍛造、圧延、熱処理の方法によって結晶組織として平均結晶粒径が $30 \sim 50 \mu\text{m}$ を有し、結晶粒径のばらつきの小さい均一かつ微細な結晶組織を得ることができる。さらに、圧延時の圧延方向を1軸や2軸よりも4軸以上、好ましくは4～8軸の多軸方向で行うことで、得られた Ta スパッタリングターゲットを使用した後に観察されるスパッタ表面の方向性を有したモフォロジーをなくすことができる。

30

【0020】

以上説明したような鍛造、鍛造パターン間の真空熱処理、圧延、圧延板の真空熱処理を組み合わせることで、本発明の均一かつ微細な結晶組織のスパッタリングターゲットを得ることができる。

【実施例1】

40

【0021】

Ta インゴット $\phi 140 [\text{mm}] \times L 200 [\text{mm}]$ に対して締め鍛造と据え込み鍛造との繰り返しを3回行って1次鍛造ビレットを得た後、真空熱処理 (1.3×10^{-2} Pa 以下、 1050°C) を実施した。この一次鍛造ビレットに対し、1次鍛造と同様の方法を実施して、2次鍛造ビレットを準備した。次いで、この2次鍛造ビレットに対して前記と同様の真空熱処理を実施した後、さらに同じ方法で3次鍛造を実施した。得られた3次鍛造ビレットを表面加工 (旋盤加工) により表層欠陥、キズ、かぶり等を除去した後、総圧延率 70% で4軸の方向から冷間圧延加工を行い、得られた圧延板に対して 850°C にて圧延板の真空熱処理 (1.3×10^{-2} Pa 以下) を実施した。得られたスパッタリングターゲット全表面 (スパッタリングターゲット表面の中央部、中間部および外周部の3箇所) の平

50

均結晶粒径は $29 \sim 32 \mu\text{m}$ であり、かつ、結晶粒径の標準偏差は $13 \mu\text{m}$ であった。なお、本実施例では、上記表面加工を旋盤加工により行ったが、その他にフライス等の機械加工によって行うこともできる。

【実施例 2】

【0022】

実施例 1 記載の方法に従って準備した表面加工済みの 3 次鍛造ビレットを総圧延率 70% で 6 軸の方向から冷間圧延加工を行い、得られた圧延板に対して 880°C にて圧延板の真空熱処理を実施した。得られたスパッタリングターゲット全表面の平均結晶粒径は $29 \sim 36 \mu\text{m}$ であり、かつ、結晶粒径の標準偏差は $17 \mu\text{m}$ であった。

【実施例 3】

【0023】

実施例 1 記載の方法に従って準備した表面加工済みの 3 次鍛造ビレットを総圧延率 72% で 8 軸の方向から冷間圧延加工を行い、得られた圧延板に対して 900°C にて圧延板の真空熱処理を実施した。得られたスパッタリングターゲット全表面の平均結晶粒径は $36 \sim 42 \mu\text{m}$ であり、かつ、結晶粒径の標準偏差は $19 \mu\text{m}$ であった。

【実施例 4】

【0024】

実施例 1 記載の方法に従って準備した表面加工済みの 3 次鍛造ビレットを総圧延率 72% で 6 軸の方向から冷間圧延加工を行い、得られた圧延板に対して 950°C にて圧延板の真空熱処理を実施した。得られたターゲット全表面の平均結晶粒径は $49 \sim 54 \mu\text{m}$ であり、かつ、結晶粒径の標準偏差は $30 \mu\text{m}$ であった。

【実施例 5】

【0025】

実施例 1 記載の方法に従って準備した表面加工済みの 3 次鍛造ビレットを総圧延率 77% で 8 軸の方向から冷間圧延加工を行い、得られた圧延板に対して 850°C にて圧延板の真空熱処理を実施した。得られたスパッタリングターゲット全表面の平均結晶粒径は $27 \sim 32 \mu\text{m}$ であり、かつ、結晶粒径の標準偏差は $13 \mu\text{m}$ であった。

【実施例 6】

【0026】

実施例 1 記載の方法に従って準備した表面加工済みの 3 次鍛造ビレットを総圧延率 77% で 8 軸の方向から冷間圧延加工を行い、得られた圧延板に対して 880°C にて圧延板の真空熱処理を実施した。得られたスパッタリングターゲット全表面の平均結晶粒径は $32 \sim 37 \mu\text{m}$ であり、かつ、結晶粒径の標準偏差は $17 \mu\text{m}$ であった。

【実施例 7】

【0027】

実施例 1 記載の方法に従って準備した 3 次鍛造ビレットに対し真空熱処理 ($1.3 \times 10^{-2} \text{ Pa}$ 以下、 1050°C) を実施し、次いで、同様な方法で 4 次鍛造ビレットを作製した。得られた 4 次鍛造ビレットを実施例 1 の場合と同様に表面加工した後、総圧延率 70% で 4 軸の方向から冷間圧延加工を行い、得られた圧延板に対して 850°C にて圧延板の真空熱処理を実施した。得られたスパッタリングターゲット全表面の平均結晶粒径は $29 \sim 31 \mu\text{m}$ であり、かつ、結晶粒径の標準偏差は $12 \mu\text{m}$ であった。

【実施例 8】

【0028】

実施例 7 記載の方法に従って準備した表面加工済み 4 次鍛造ビレットに対し、総圧延率 77% で 6 軸の方向に冷間圧延加工を行い、得られた圧延板に対して 850°C にて圧延板の真空熱処理を実施した。得られたスパッタリングターゲット全表面の平均結晶粒径は $27 \sim 31 \mu\text{m}$ であり、かつ、結晶粒径の標準偏差は $12 \mu\text{m}$ であった。

(比較例 1)

【0029】

Ta インゴット $\phi 140 [\text{mm}] \times L 200 [\text{mm}]$ をスラブに鍛造 (展伸鍛造) した後、実

10

20

30

40

50

実施例 1 の場合と同様に表面加工(但し、フライス加工)を実施した。次いで、1 軸方向に総圧延率 57% で冷間圧延加工を行い、1150℃ で圧延板の真空熱処理した。得られたスパッタリングターゲット内の場所により平均粒径は異なるが、スパッタリングターゲット全表面において平均結晶粒径は 222~380 μm の範囲にあり、細粒部と粗粒部が混在していた。また、結晶粒径の標準偏差は 348 μm であった。

(比較例 2)

【0030】

Ta インゴット φ140 [mm] × L200 [mm] をスラブに鍛造(展伸鍛造)した後、実施例 1 の場合と同様に表面加工(但し、フライス加工)を実施した。次いで、2 軸方向に総圧延率 57% で冷間圧延加工を行い、1050℃ で圧延板の真空熱処理した。得られたスパッタリングターゲットの平均結晶粒径は 75~333 μm であり、比較例 1 と同様に細粒部と粗粒部が混在していた。また、結晶粒径の標準偏差は 220 μm であった。

10

(比較例 3)

【0031】

Ta インゴット φ140 [mm] × L200 [mm] に対し、締め鍛造と据え込み鍛造との繰り返しを 3 回行って 1 次鍛造ビレットを得た。得られた 1 次鍛造ビレットに対して真空熱処理(1050℃)を実施した。次いで、1 次鍛造と同様な方法で、2 次鍛造ビレットを準備した。この 2 次鍛造ビレットに対し、実施例 1 の場合と同様に表面加工を実施した後、総圧延率 57% の冷間圧延加工を 4 軸の方向で行って、圧延板を得た。この圧延板に対し、1050℃ にて圧延板の真空熱処理を実施した。得られたスパッタリングターゲット全表面の平均結晶粒径は 104~150 μm であり、かつ、結晶粒径の標準偏差は 90 μm であった。

20

(比較例 4)

【0032】

比較例 3 に記載の方法に従って同様に 2 次鍛造ビレットを準備した。このビレットに対し、実施例 1 の場合と同様に表面加工を実施した後、総圧延率 72% の冷間圧延加工を 6 軸で行って、圧延板を得た。この圧延板に対し、1050℃ にて圧延板の真空熱処理を実施した。得られたスパッタリングターゲット全表面の平均結晶粒径は、80~100 μm であり、かつ、結晶粒径の標準偏差は 59 μm であった。

(比較例 5)

30

【0033】

実施例 1 に記載の方法に従って準備した 3 次鍛造ビレットに対し、実施例 1 の場合と同様に表面加工を実施した後、総圧延率 72% で 6 軸の方向から冷間圧延加工を行って、圧延板を得た。この圧延板に対し、1050℃ にて圧延板の真空熱処理を実施した。得られたスパッタリングターゲット全表面の平均結晶粒径は 86~99 μm であり、かつ、結晶粒径の標準偏差は 54 μm であった。

(比較例 6)

【0034】

実施例 1 に記載の方法に従って準備した 3 次鍛造ビレットに対し、実施例 1 の場合と同様に表面加工を実施した後、総圧延率 72% で 6 軸の方向から冷間圧延加工を行って、圧延板を得た。この圧延板に対し、1000℃ にて圧延板の真空熱処理を実施した。得られたスパッタリングターゲット全表面の平均結晶粒径は 70~84 μm であり、かつ、結晶粒径の標準偏差は 39 μm であった。

40

(比較例 7)

【0035】

実施例 1 に記載の方法に従って準備した 3 次鍛造ビレットに対し、実施例 1 の場合と同様に表面加工を実施した後、総圧延率 83% で 8 軸の方向から冷間圧延加工を行って、圧延板を得た。この圧延板に対し、900℃ にて圧延板の真空熱処理を実施した。得られたスパッタリングターゲット全表面の平均結晶粒径は 58~76 μm であり、かつ、結晶粒径の標準偏差は 44 μm であった。

50

【0036】

(比較例8)

実施例1に記載の方法に従って準備した3次鍛造ビレットに対し、実施例1の場合と同様に表面加工を実施した後、総圧延率83%で6軸の方向から冷間圧延加工を行って、圧延板を得た。この圧延板に対し、950℃にて圧延板の真空熱処理を実施した。得られたスパッタリングターゲット全表面の平均結晶粒径は75～82μmであり、かつ、結晶粒径の標準偏差は45μmであった。

(比較例9)

【0037】

実施例1に記載の方法に従って準備した3次鍛造ビレットに対し、実施例1の場合と同様に表面加工を実施した後、総圧延率83%で8軸の方向から冷間圧延加工を行って、圧延板を得た。この圧延板に対し、1000℃にて圧延板の真空熱処理を実施した。得られたスパッタリングターゲット全表面の平均結晶粒径は86～102μmであり、かつ、結晶粒径の標準偏差は49μmであった。

(比較例10)

【0038】

実施例1に記載の方法に従って準備した3次鍛造ビレットに対し、実施例1の場合と同様に表面加工を実施した後、総圧延率83%で8軸の方向から冷間圧延加工を行って、圧延板を得た。この圧延板に対し、1050℃にて圧延板の真空熱処理を実施した。得られたスパッタリングターゲット全表面の平均結晶粒径は103～137μmであり、かつ、結晶粒径の標準偏差は76μmであった。

【0039】

上記実施例1～8および比較例1～10におけるスパッタリングターゲットの製造条件ならびに得られたスパッタリングターゲット全表面(中央部、中間部および外周部の3箇所)の平均粒径および結晶粒径の標準偏差のデータについて、以下の表1～5に纏めて示すと共に、鍛造回数(鍛造パターンの繰り返し回数)を3回実施して得られたビレットを総圧延率の異なる圧延を行った後に得た圧延板の各々の熱処理温度と平均結晶粒径との関係を図1のグラフに示す。表1～5中の純度「4N5」は、Al、Cr、Fe、Ni、Ti、Na、Mg、K、Si、Cu、Co、Nb、W、Mo、U、Thの不純物含有量の合計が50ppm以下であり、かつ、C、N、Oの各々が50ppm以下であること意味する。「鍛造回数」は、締め鍛造と据え込み鍛造との繰り返しを3回行う工程を1回の鍛造パターンとして、圧延前までにこの鍛造パターンの繰り返しを行う回数をいう。また、「粒径の標準偏差」は、3箇所撮影した粒径写真の視野の中で各々について画像処理装置を用いて算出し、その値のうちの最大値を示すものである。サンプル各位置の平均結晶粒径の値に対する標準偏差ではないが、結晶粒径の均一性の目安として有効な値であると考え

【0040】

なお、表2には鍛造手法による結晶粒径均一化の効果、表3には圧延率による結晶粒径均一微細化の効果、表4には鍛造回数による結晶粒径均一化の効果、表5には圧延率と結晶粒径のばらつきに与える影響について纏めて示す。

【0041】

(表1)

10

20

30

40

	実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5
純度	4N5	4N5	4N5	4N5	4N5
鍛造手法	締め鍛造 + 据え込み鍛造				
鍛造回数	3回	3回	3回	3回	3回
圧延方向	4軸	6軸	8軸	6軸	8軸
圧延率	70%	70%	72%	72%	77%
鍛造間の真空熱処理 温度および圧力	1050℃; 1.3 ×10 ⁻² Pa以下	1050℃; 1.3 ×10 ⁻² Pa以下	1050℃; 1.3 ×10 ⁻² Pa以下	1050℃; 1.3 ×10 ⁻² Pa以下	1050℃; 1.3 ×10 ⁻² Pa以下
圧延板の真空熱処理 温度および圧力	850℃; 1.3 ×10 ⁻² Pa以下	880℃; 1.3 ×10 ⁻² Pa以下	900℃; 1.3 ×10 ⁻² Pa以下	950℃; 1.3 ×10 ⁻² Pa以下	850℃; 1.3 ×10 ⁻² Pa以下
平均結晶粒径(最大- 最小)	32-29 μm	36-29 μm	42-36 μm	54-49 μm	32-27 μm
粒径の標準偏差	13 μm	17 μm	19 μm	30 μm	13 μm

10

20

【0042】

(表1 続き)

	実施例6	実施例7	実施例8
純度	4N5	4N5	4N5
鍛造手法	締め鍛造 + 据え込み鍛造		
鍛造回数	3回	4回	4回
圧延方向	8軸	4軸	6軸
圧延率	77%	70%	77%
鍛造間の真空熱処理 温度および圧力	1050℃; 1.3 ×10 ⁻² Pa以下	1050℃; 1.3 ×10 ⁻² Pa以下	1050℃; 1.3 ×10 ⁻² Pa以下
圧延板の真空熱処理 温度および圧力	880℃; 1.3 ×10 ⁻² Pa以下	850℃; 1.3 ×10 ⁻² Pa以下	850℃; 1.3 ×10 ⁻² Pa以下
平均結晶粒径(最大- 最小)	37-32 μm	31-29 μm	31-27 μm
粒径の標準偏差	17 μm	12 μm	12 μm

30

40

【0043】

(表2) 鍛造手法による結晶粒径均一化の効果

	比較例1	比較例2	比較例3
純度	4N5	4N5	4N5
鍛造手法	展伸鍛造	展伸鍛造	締め鍛造+据え込み鍛造
鍛造回数	1回	1回	2回
圧延方向	1軸	2軸	4軸
圧延率	57%	57%	57%
鍛造間の真空熱処理 温度および圧力	—	—	1050℃; 1.3×10^{-2} Pa以下
圧延板の真空熱処理 温度および圧力	1150℃; 1.3×10^{-2} Pa以下	1050℃; 1.3×10^{-2} Pa以下	1050℃; 1.3×10^{-2} Pa以下
平均結晶粒径(最大- 最小)	380-222 μ m	333-75 μ m	150-104 μ m
粒径の標準偏差	348 μ m	220 μ m	90 μ m

10

20

【0044】

(表3) 圧延率による結晶粒径均一微細化の効果

	比較例3	比較例4	比較例5	比較例10
純度	4N5	4N5	4N5	4N5
鍛造手法	締め鍛造+据え込み鍛造			
鍛造回数	2回	2回	3回	3回
圧延方向	4軸	6軸	6軸	8軸
圧延率	57%	72%	72%	83%
鍛造間の真空熱処理 温度および圧力	1050℃; 1.3×10^{-2} Pa以下	1050℃; 1.3×10^{-2} Pa以下	1050℃; 1.3×10^{-2} Pa以下	1050℃; 1.3×10^{-2} Pa以下
圧延板の真空熱処理 温度および圧力	1050℃; 1.3×10^{-2} Pa以下	1050℃; 1.3×10^{-2} Pa以下	1050℃; 1.3×10^{-2} Pa以下	1050℃; 1.3×10^{-2} Pa以下
平均結晶粒径(最大- 最小)	150-104 μ m	100-80 μ m	99-86 μ m	137-103 μ m
粒径の標準偏差	90 μ m	59 μ m	54 μ m	76 μ m

30

40

【0045】

(表4) 鍛造回数による結晶粒径均一化の効果

	比較例4	比較例5
純度	4N5	4N5
鍛造手法	締め鍛造 + 据え込み鍛造	
鍛造回数	2回	3回
圧延方向	6軸	6軸
圧延率	72%	72%
鍛造間の真空熱処理 温度および圧力	1050℃; 1.3 ×10 ⁻² Pa以下	1050℃; 1.3 ×10 ⁻² Pa以下
圧延板の真空熱処理 温度および圧力	1050℃; 1.3 ×10 ⁻² Pa以下	1050℃; 1.3 ×10 ⁻² Pa以下
平均結晶粒径(最大- 最小)	100-80 μm	99-86 μm
粒径の標準偏差	59 μm	54 μm

10

【0046】

20

(表5) 圧延率と結晶粒径のばらつきに与える影響

	実施例4	比較例3	比較例6	比較例7
純度	4N5	4N5	4N5	4N5
鍛造手法	締め鍛造 + 据え込み鍛造			
鍛造回数	3回	2回	3回	3回
圧延方向	6軸	4軸	6軸	8軸
圧延率	72%	57%	72%	83%
鍛造間の真空熱処理 温度および圧力	1050℃; 1.3 ×10 ⁻² Pa以下	1050℃; 1.3 ×10 ⁻² Pa以下	1050℃; 1.3 ×10 ⁻² Pa以下	1050℃; 1.3 ×10 ⁻² Pa以下
圧延板の真空熱処理 温度および圧力	950℃; 1.3× 10 ⁻² Pa以下	1050℃; 1.3 ×10 ⁻² Pa以下	1000℃; 1.3 ×10 ⁻² Pa以下	900℃; 1.3× 10 ⁻² Pa以下
平均結晶粒径(最大- 最小)	54-49 μm	150-104 μm	84-70 μm	76-58 μm
粒径の標準偏差	30 μm	90 μm	39 μm	44 μm

30

【0047】

40

(表5 続き)

	比較例8	比較例9
純度	4N5	4N5
鍛造手法	締め鍛造＋据え込み鍛造	
鍛造回数	3回	3回
圧延方向	6軸	8軸
圧延率	83%	83%
鍛造間の真空熱処理 温度および圧力	1050℃;1.3 ×10 ⁻² Pa以下	1050℃;1.3 ×10 ⁻² Pa以下
圧延板の真空熱処理 温度および圧力	950℃;1.3× 10 ⁻² Pa以下	1000℃;1.3 ×10 ⁻² Pa以下
平均結晶粒径(最大- 最小)	82-75 μm	102-86 μm
粒径の標準偏差	45 μm	49 μm

【0048】

上記実施例および比較例ならびに表1～5から明らかなように、Taインゴットの鍛造において、「締め鍛造と据え込み鍛造とを交互に3回以上繰り返して行う冷間鍛造工程」を1サイクルの鍛造パターンとして、Taインゴットに対してこの鍛造パターンを3回以上実施し、かつ、各鍛造パターンの間にそれぞれ真空熱処理を実施し、Taビレットを準備することにより、歩留まりを低下させることなくTaビレットの結晶組織が均一化される。さらに、このTaビレットを圧延するときは、圧延率と真空熱処理との組み合わせ条件を最適化することにより、微細かつ均一な結晶組織を有するTaスパッタリングターゲットを提供できることが分かる。

【0049】

このTaインゴットとしては、アスペクト比(長さ/直径)=0.7～1.5の範囲内のインゴットを使用する。また、締め鍛造と据え込み鍛造とにおけるインゴットの変形の範囲を、アスペクト比(長さ/直径)=0.7～1.5の範囲で行うことにより、鍛造時の不均一な変形を抑え、全体に歪みを加えることができるため、Taビレットの歩留まりを低下させることがない。

【0050】

さらに、このTaビレットを、4軸以上の方向から総圧延率として65～75%で冷間圧延した後、その圧延板を850℃～950℃の範囲で真空熱処理することにより、均一かつ微細な結晶組織を有するTaスパッタリングターゲットを提供できることが分かる。

【0051】

さらにまた、純度の高いTaインゴットを用いた場合でも、本発明の目的を達成できることが分かる。

【産業上の利用可能性】

【0052】

本発明によれば、鍛造においては歩留まりを低下させず、Taビレットの結晶組織を均一化させる。さらに、このTaビレットの圧延と真空熱処理との組み合わせ条件を最適化することにより、微細かつ均一な結晶組織を有するTaスパッタリングターゲットおよびその製造方法を提供することができるので、本発明は、例えば薄膜を均一かつ薄く形成することが必要な技術分野、例えば半導体分野で利用可能な技術である。

【図面の簡単な説明】

【0053】

10

20

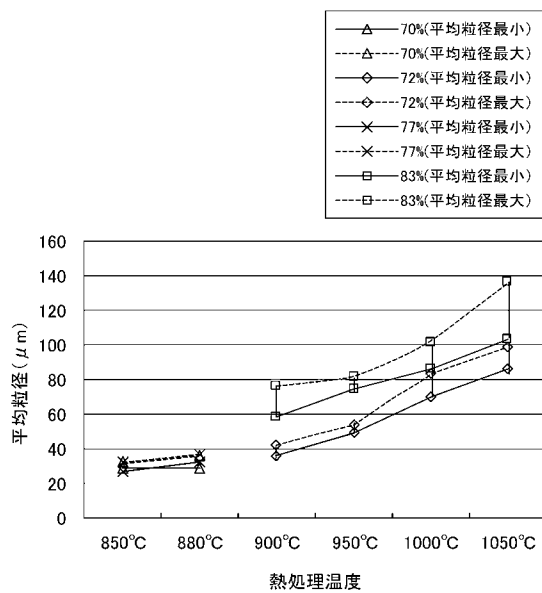
30

40

50

【図 1】鍛造パターンを 3 回繰り返した後に得られたビレットを総圧延率の異なる圧延を行った後に得た圧延板各々の熱処理温度と平均結晶粒径との関係を示すグラフ。

【図 1】



フロントページの続き

(51)Int.Cl.			F I		
B 2 1 J	5/00	(2006.01)	B 2 1 J	5/00	K
B 2 1 B	3/00	(2006.01)	B 2 1 J	5/00	B
C 2 2 F	1/00	(2006.01)	B 2 1 B	3/00	L
			C 2 2 F	1/00	6 8 5
			C 2 2 F	1/00	6 9 4 A
			C 2 2 F	1/00	6 9 1 B
			C 2 2 F	1/00	6 0 4
			C 2 2 F	1/00	6 1 3
			C 2 2 F	1/00	6 2 3

(72)発明者 増田 忠
千葉県山武市横田 5 1 6 アルバックマテリアル株式会社内

審査官 菊地 則義

(56)参考文献 特開平 1 1 - 0 8 0 9 4 2 (J P, A)
国際公開第 2 0 0 5 / 0 4 5 0 9 0 (W O, A 1)
国際公開第 2 0 0 4 / 0 9 0 1 9 3 (W O, A 1)
特開 2 0 0 4 - 1 0 7 7 5 8 (J P, A)
特開 2 0 0 3 - 1 6 6 0 5 3 (J P, A)
特表 2 0 0 4 - 5 2 6 8 6 3 (J P, A)
特表 2 0 0 2 - 5 3 0 5 3 4 (J P, A)

(58)調査した分野(Int.Cl., D B名)
C 2 3 C 1 4 / 0 0 - 1 4 / 5 8