

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第4729253号

(P4729253)

(45) 発行日 平成23年7月20日 (2011.7.20)

(24) 登録日 平成23年4月22日 (2011.4.22)

(51) Int. Cl.

F I

C 2 3 C 14/34 (2006.01)

C 2 3 C 14/34

A

C O 4 B 35/00 (2006.01)

C O 4 B 35/00

H

請求項の数 2 (全 14 頁)

(21) 出願番号	特願2003-515476 (P2003-515476)	(73) 特許権者	397064944
(86) (22) 出願日	平成14年7月25日 (2002.7.25)		株式会社大阪チタニウムテクノロジーズ
(86) 国際出願番号	PCT/JP2002/007570		兵庫県尼崎市東浜町1番地
(87) 国際公開番号	W02003/010112	(74) 代理人	100103481
(87) 国際公開日	平成15年2月6日 (2003.2.6)		弁理士 森 道雄
審査請求日	平成15年7月25日 (2003.7.25)	(72) 発明者	夏目 義丈
審判番号	不服2008-3430 (P2008-3430/J1)		兵庫県伊丹市野間8丁目6-25-101
審判請求日	平成20年2月14日 (2008.2.14)	(72) 発明者	大西 隆
(31) 優先権主張番号	特願2001-225652 (P2001-225652)		兵庫県西宮市津門呉羽町6-32-101
(32) 優先日	平成13年7月26日 (2001.7.26)	(72) 発明者	小笠原 忠司
(33) 優先権主張国	日本国 (JP)		兵庫県西宮市若草町1丁目10-21
(31) 優先権主張番号	特願2001-233034 (P2001-233034)	(72) 発明者	渡辺 宗敏
(32) 優先日	平成13年8月1日 (2001.8.1)		大阪府吹田市千里山松が丘8-8
(33) 優先権主張国	日本国 (JP)		

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 一酸化けい素焼結体および一酸化けい素焼結ターゲット

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

焼結体の嵩密度が 2.13 g/cm^3 以上で直径が 100 mm 以上のスパッタリング用ターゲット材である一酸化けい素焼結体。

【請求項2】

焼結体の嵩密度が 2.13 g/cm^3 以上で直径が 100 mm 以上の一酸化けい素焼結ターゲット。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

この発明は、真空蒸着やスパッタリングなどの気相成膜用材料である一酸化けい素焼結体の改良に係り、原料粉末を特定範囲のホットプレス条件、さらには複数分割した内型と緩衝材を用いてホットプレス法で焼結することで、機械加工性にすぐれ、組織が均質で低スプラッシュ性を有する蒸着材料が得られ、またスパッタリング用ターゲットとして所定の形状ですぐれた平面性が得られる一酸化けい素焼結体とそれから成形される一酸化けい素焼結ターゲットに関する。

【0002】

【従来の技術】

一酸化けい素を真空蒸着法などで成膜して得た薄膜は、種々の材料に対して密着性が良く、絶縁抵抗が高く、誘電特性も優れているだけでなく、比較的低温で蒸着が可能で成膜

が容易である等の特徴を有する。

【0003】

一酸化けい素蒸着膜は、上記のごとくすぐれた特性を有することから多くの用途に利用されるが、例えば光学特性を利用する用途として、ガラスなどの反射防止膜、保護膜、あるいは太陽電池の反射防止膜があり、また、絶縁特性を利用するものとして、薄膜コンデンサがある。

【0004】

さらに、酸素、水蒸気、香りなどに対するガス遮断性がよく、プラスチックフィルムに蒸着してガスバリア性フィルムとなし、食品、医薬品、精密電子部品などの包装に使用されている。

10

【0005】

かかる一酸化けい素膜は、各種の蒸着方法の他、スパッタリング法などにより成膜されるため、成膜原料となる一酸化けい素用蒸着材料やスパッタリング用ターゲットが各成膜法で要求される形状寸法加工される。

【0006】

上記一酸化けい素蒸着膜を作るための蒸着材料は、一般に、金属けい素粉末と二酸化けい素粉末との混合物を真空中で加熱・反応させて生成した気体一酸化けい素を、比較的低温の析出基体に蒸着させて得られる一酸化けい素塊が用いられる。あるいは、上記混合物の外に、一酸化けい素塊を生成する際に発生するスクラップを添加した原料が使用されることもある。

20

【0007】

上記の一酸化けい素塊は、脆くて欠けやすく機械加工が困難なため、使用しやすい大きさに砕いて小塊として、例えば、50mm程度に砕いた板状小塊が用いられる。この一酸化けい素小塊は、電子ビーム蒸着法や抵抗加熱蒸着法あるいはプラズマ加熱蒸着法などの蒸着材料として用いられる。

【0008】

真空蒸着にて製造した一酸化けい素塊は、組織が均一でなく、蒸着初期に析出基板に析出した部分は針状組織をしており、この部分を蒸着材料としてフィルム上に成膜すると、スプラッシュ現象が多発する問題がある。なお、析出基板上にその後析出した蒸着材料の表面付近はかかる問題がない。

30

【0009】

近年、電子ビーム加熱蒸着法による成膜の生産性を向上するために、一酸化けい素蒸着材料を連続的に供給して連続成膜を行う方法が検討されている。蒸着材料を連続的に供給するために粒状原料を加熱容器に連続的に供給する方法が考えられるが、スプラッシュが激しく発生する問題がある。そこで、円柱や角柱の長い蒸着材料を、水冷底無しつぼの下方から連続的に供給し、蒸着材料の上面を電子ビームやプラズマビームで加熱して連続成膜を行うことも考えられるが、従来の蒸着材料は、脆くて機械加工が困難であり、不均一でたとえ針状組織部分を除去したとしても採用が困難である。

【0010】

一方、一酸化けい素蒸着材料を安価に製造する方法として、けい素粉末と二酸化けい素粉末とを乾式で混合して加圧成形し焼結したものを、一酸化けい素用蒸着材料とする提案がなされている（特開昭63-310961号公報）。この焼結法によれば、比較的 low コストで製造できるが、嵩密度が低く前記スプラッシュ現象を十分に抑制することができなかった。

40

【0011】

従来の真空凝縮法で得た一酸化けい素用蒸着材料、及びけい素粉末と二酸化けい素粉末とを乾式で混合して加圧、成形後に焼結して得た該蒸着材料は、いずれもスプラッシュの発生を十分に抑制できなかった。

【0012】

また、後者の焼結法の場合には、加熱によりけい素と二酸化けい素が反応して一酸化け

50

い素を生成した後に、昇華、成膜が起こるため、成膜速度が遅いという問題がある。

【0013】

一方、使用する蒸着装置のターゲット保持部の形状に、蒸着材料の形状を合わせる必要から材料を機械加工する場合がある。しかし、従来の真空凝縮法で得たり、原料粉末を乾式で混合して加圧、成形後に焼結して得た一酸化けい素用蒸着材料では、加工時に割れや欠けが多発するため、希望の形状に機械加工することが困難であった。

【0014】

また、一酸化けい素は、スパッタリング用ターゲットとして用いられる。該ターゲット材料としては、スパッタリング装置のターゲットホルダーに応じた形状に加工されていること、スパッタリング時のパーティクルの発生を抑制するために高密度であること、組織が均質であることが要求されている。

10

【0015】

スパッタリング用ターゲットとして望ましい密度としては、その嵩密度が真密度の95%以上である。ここで、一酸化けい素の真密度は、 2.24 g/cm^3 であるから、嵩密度が真密度の95%以上とは、 2.13 g/cm^3 以上に相当する。

【0016】

特開平9-143689号公報と特開平9-143690号公報には、けい素粉末と二酸化けい素粉末とを含有するスラリーを湿式成形し、その成形の際にゲル化させ、得られた成形物を乾燥し、焼成する多孔質蒸着材料が提案されている。この公報に記載された蒸着材料は、嵩密度が $0.67 \sim 1.57 \text{ g/cm}^3$ （真密度の30～70%に相当）しか

20

【0017】

前述した特開昭63-310961号公報に記載された蒸着材料は、けい素粉末と二酸化けい素粉末の混合焼結体であって、けい素粉末と二酸化けい素粉末との間での反応は殆ど進行せず、嵩密度は $1.2 \sim 1.3 \text{ g/cm}^3$ 程度であり、 2.13 g/cm^3 以上の焼結体は得られない。

【0018】

さらに、特開昭63-166965号公報には、従来法として、二酸化けい素と金属けい素との混合物を真空中で加熱して昇華・析出した一酸化けい素を、粉碎したのち加圧・焼結して得られた成形体からターゲットを得る方法が記載されている。しかし、発明者らの実験において、一酸化けい素は真空中で約 1200°C で固体から気体へ昇華する性質があるため、昇華温度以下で加熱上限温度と考えられる 1150°C で加圧・焼結を行ったが、その焼結体の嵩密度は 1.3 g/cm^3 程度しか得られなかった。

30

【0019】

【発明が解決しようとする課題】

従来、いずれの製造方法においても、一酸化けい素の焼結体の嵩密度は 1.5 g/cm^3 を超えることがなかった。

【0020】

この発明は、上述の従来技術に見られる問題を解決し、良好な機械加工性、低スプラッシュ性及び均質性の条件を満足し、真空蒸着による連続的な成膜も可能にする一酸化けい素蒸着材料として利用できる一酸化けい素焼結体およびそれから成形される一酸化けい素焼結ターゲットの提供を目的としている。

40

【0021】

また、この発明は、スパッタリング用ターゲットとして、ターゲットホルダーに装着可能な形状を得ることが容易であり、高密度で均一な組織を有してパーティクルの発生を抑制できる一酸化けい素焼結体およびそれから成形される一酸化けい素焼結ターゲットの提供を目的としている。

【0022】

【課題を解決するための手段】

発明者らは、一酸化けい素焼結体の組織の均質化と高密度化について、種々検討した結

50

果、真空蒸着法で得た一酸化けい素塊から得た粉末はプレス成形ができずに焼結に至らないこと、特に一酸化けい素塊は嵩密度が 1.95 g/cm^3 以上のものが得られるが、スパッタリング用ターゲットに機械加工すると、厚み方向のビッカース硬さにばらつきを有して均質な組織とは言えないことから、加工中の全量に割れや欠けが発生して使用不能であることを知見した。

【0023】

発明者らは、さらに検討を加えて、焼結体の嵩密度を高めることにより、焼結体の機械加工性と低スプラッシュ性を向上させることに着目し、加圧焼結について検討した結果、いずれの製法で得られた一酸化けい素粉も、昇華温度以下で加熱上限温度と考えられる 1150°C で、加圧・焼結を行っても焼結体の嵩密度は 1.3 g/cm^3 程度であり、それ

10

【0024】

また、発明者らは、加圧焼結について鋭意検討した結果、真空雰囲気下で原料を加圧・成形しながら焼結する手段を採用し、これを一酸化けい素の昇華温度以上の 1200°C 以上で加圧成形すると、昇華することなく希望する形状の一酸化けい素焼結体を得られること、少なくとも嵩密度が 1.6 g/cm^3 以上の焼結体を得られること、さらに焼結温度を 1250°C 以上とすることにより、原料粒子間の焼結による結合がより促進される結果、嵩密度が 2.13 g/cm^3 以上の焼結体を得られることを知見した。

【0025】

さらに、発明者らは、上記の加圧・成形しながら昇華温度以上の加熱条件で焼結する方法において、被処理材の寸法が大きくなると、焼結後の冷却中に焼結体に割れが生じたり、プレス型の破損が懸念されるが、一体型の外型内に複数分割した内型を緩衝材シートを介して組み込んだ構成のプレス型を用いることで、例えば直径が 100 mm 以上のスパッタリング用ターゲット材が容易に得られることを知見し、この発明を完成した。

20

【0026】

すなわち、この発明は、一酸化けい素の塊粒又は粉末あるいはその両方をプレス型に充填し、プレス圧力が 10 MPa 以上、焼結温度が $1200 \sim 1350^\circ\text{C}$ 、保持時間が 30 min 以上の条件で、ホットプレスを行い焼結することにより、嵩密度が 1.68 g/cm^3 以上の一酸化けい素焼結体を得る製造方法を適用することができる。

【0027】

具体的には、この発明は、上記構成の製造方法において、圧力が 15 MPa 以上、焼結温度が $1300^\circ\text{C} \sim 1350^\circ\text{C}$ 、保持時間が 1 hr 以上の条件を適用することにより得られる、真密度にほぼ等しい嵩密度が 2.2 g/cm^3 以上の一酸化けい素焼結体を対象とできる。

30

【0028】

【発明の実施の形態】

この発明による一酸化けい素焼結体の製造方法は、一酸化けい素の塊粒又は粉末あるいはその両方をプレス型に充填し、プレス圧力が 10 MPa 以上、焼結温度が $1200 \sim 1350^\circ\text{C}$ 、保持時間が 30 min 以上、好ましくは 1 hr 以上の条件（但し、 $1200^\circ\text{C} \times 10 \text{ MPa}$ を除く）で、ホットプレスを行い焼結する方法である。

40

【0029】

この発明において、原料となる一酸化けい素の粉末は、その製法や性状については特に限定されないが、好ましくは、金属けい素粉末と二酸化けい素粉末との混合物からなる原料を、真空中で加熱・反応させて生成した一酸化けい素塊を破碎したものをを用いるとよい。

【0030】

この発明において、原料となる一酸化けい素の塊は、真空蒸着により生成した一酸化けい素の塊を板状のままあるいは破断した小片として使用することが可能である。さらには、前記塊より粒状～粉末化したものをを用いることも可能である。

【0031】

50

この発明の一酸化けい素の粉末の粒径は、 $250\text{ }\mu\text{m}$ 以上、 2 mm 以下であることが好ましい。すなわち、 $250\text{ }\mu\text{m}$ 未満では、粒子表面積が増えすぎて酸素濃度が増加すること、粉体製造時の破碎に伴う汚染が懸念されるため、 $250\text{ }\mu\text{m}$ 以上の粉末のものを使用することが望ましく、また、 2 mm を越えると、型内に挿入する際の充填率が低下するため、好ましくない。

【0032】

この発明によるホットプレスでは、得られる一酸化けい素焼結体の嵩密度が $1.6\sim 2.1\text{ g/cm}^3$ の場合は、焼結体の形態は密度の上昇とともにガラス化するがまだ透明でなく、粒状感が残る場合もある外観を呈している。

【0033】

しかし、嵩密度が 2.1 g/cm^3 以上の場合は、透明となりますガラス状となるため、 2.1 g/cm^3 以上を目的とするホットプレスによる焼結原料には、前述した真空蒸着により生成した一酸化けい素の塊を板状のまま用いたり、あるいは破断した小片として用い、高压高温の焼結を実施することが可能となる。

【0034】

この発明において、真空雰囲気は、特に限定されないが、焼結時に原料粉末よりガスなどの放出がないように、十分に減圧真空化して先に脱気しておくことが望ましい。例えば、 $1\times 10^{-2}\text{ Torr}$ 程度まで減圧してその後ホットプレスしたり、減圧後にアルゴンガスを導入するなどの手法が採用できる。

【0035】

この発明において、プレス荷重を 10 MPa 以上で、かつ焼結温度を $1200\sim 1350\text{ }^{\circ}\text{C}$ としたのは、主にプレス荷重と焼結温度との組合せにより、嵩密度が 1.6 g/cm^3 以上の焼結体を得られるためである。

【0036】

しかし、実施例に明らかなように、温度が $1200\text{ }^{\circ}\text{C}$ で圧力が 10 MPa の場合は、嵩密度が 1.6 g/cm^3 未満となるために除外するが、温度が $1200\text{ }^{\circ}\text{C}$ でも圧力が 10 MPa を越えると嵩密度が向上し、また、圧力が 10 MPa でも温度が $1200\text{ }^{\circ}\text{C}$ を越えると嵩密度が向上して 1.6 g/cm^3 以上となる。特に雰囲気温度の上昇は、嵩密度の向上に顕著に作用する傾向にある。

【0037】

すなわち、温度が $1200\text{ }^{\circ}\text{C}$ 未満では、密度の上昇効果がなく、所望の形状の焼結体を得られず、 $1350\text{ }^{\circ}\text{C}$ で嵩密度が真密度に等しい 2.24 g/cm^3 の焼結体を得られたため、 $1350\text{ }^{\circ}\text{C}$ を超えて加熱する必要はない。

【0038】

また、プレス荷重は、 10 MPa 以上、特に 15 MPa 以上であれば温度との組み合わせで所望の密度が得られるため、特に限定する必要はないが、 20 MPa を越えると密度の向上効果に差がみられないため、 20 MPa 以下の範囲の圧力でも十分である。

【0039】

この発明におけるホットプレスの保持時間は、プレス荷重と焼結温度との組合せによるが、少なくとも 30 分は必要であり、十分な焼結を得るには 1 時間以上が必要である。好ましくは、 $1\sim 2$ 時間である。

【0040】

この発明において、圧力が $15\text{ MPa}\sim 20\text{ MPa}$ 、焼結温度が $1250\text{ }^{\circ}\text{C}\sim 1350\text{ }^{\circ}\text{C}$ 、保持時間が 1 hr 以上の条件で、嵩密度が 2.13 g/cm^3 以上の一酸化けい素焼結体を得られる。

【0041】

また、圧力が 15 MPa 以上、焼結温度が $1300\text{ }^{\circ}\text{C}\sim 1350\text{ }^{\circ}\text{C}$ 、保持時間が 1 hr 以上の条件で、嵩密度が 2.2 g/cm^3 以上の一酸化けい素焼結体を得ることが可能である。

【0042】

この発明において、加圧・成形しながら昇華温度の1200℃以上の加熱条件で焼結するが、焼結後の冷却中に焼結体に割れが生じたり、プレス型の破損する場合があります、その原因は詳らかでない。そこで発明者らは種々検討し、焼結後の冷却中にプレス型は収縮するが、焼結体は逆に焼結温度からの冷却中に膨張すると考えられることから、ホットプレスに使用するグラファイト製プレス型に、体積膨張による応力の緩和が可能な構造を採用して、冷却中の焼結体に割れが発生するのを防止した。

【0043】

すなわち、体積膨張による応力が緩和できる構造のプレス型としては、一体型の外型に、例えば二分割ないし三分割した割型の内型を所要の隙間をもって組合せ、当該隙間に緩衝材を介在したプレス用組合せ型を使用することにより、冷却中の焼結体の割れ発生を防止できる。上記緩衝材としては、炭素繊維シートやシリカ系繊維シート等の弾性により自在に伸縮できる材料からなるシートが使用できる。

10

【0044】

プレス型に一体型の外型内に隙間を設けて複数分割した内型を組合せ、かつ該隙間に緩衝材を介在した構成を採用することで、例えば市販の一酸化けい素粉末を充填して、真空雰囲気下で加圧・成形しながら焼結温度1250～1350℃で焼結することにより、直径100mm以上、高さ50mm以上の大型で、組織が均質な高品位の一酸化けい素焼結体を、割れや欠けを発生させることなく、効率良く製造することができる。

【0045】

ここで、直径100mm以上とは、スパッタリングターゲットとして直径100mmが機械加工により取り出せるサイズの焼結体を表す。

20

【0046】

上記プレス用組合せ型の一例を図面に基づいて説明する。図1は、円柱状焼結体を製造する場合のプレス用組合せ型を示す。グラファイト製の内型1は直径方向で2分割され、所要の肉厚部に下向きにテーパを付けた分割型である。グラファイト製の外型2は、その内径が上記内型1を例えば1mm程度の隙間を介して組み込み可能なように同様のテーパを付けてある。

【0047】

内型1を外型2に組み込む際は、両者間の隙間にリング状の緩衝材3を介して組み合わせる。この緩衝材3は、炭素繊維シートやシリカ系繊維シート等のごとく、弾性により直径方向に伸縮し得る素材から構成する。

30

【0048】

焼結後に焼結体を取り出すときは、下ポンチ4を下から押し上げると、内型1と外型2との隙間が開き、内型1と焼結体を取り出すことができ、取り出された内型を分解して焼結体を容易に分離回収できる。

【0049】

上記の2ピースの内型1と1ピースの外型2とを緩衝材3を介して組み合わせたプレス型に原料の一酸化けい素粉末を充填し、真空中で加圧・成形しながら焼結して得た焼結体は、冷却途中で膨張するが、分割された内型1が外向きに押されてかつ緩衝材3が圧縮されるため、内型1が外向きに開いて焼結体の膨張により発生する応力を吸収することが可能となり、冷却時の割れや欠けの発生を阻止できる。

40

【0050】

かかる構成は、例えば実施例のごとく直径110mm、高さ40mmの一酸化けい素焼結体を製造できるが、さらに、内型1の内径を200mm、300mm、400mmと大きくし、かつ高さを任意に変更することにより、任意に大型の焼結体を製造することができる。

【0051】

【実施例】

実施例1

金属けい素粉末と二酸化けい素粉末との混合物からなる原料を、真空中で加熱・反応さ

50

せて生成した一酸化けい素塊を破碎して最小粒径0.3～最大粒径1.7mmの一酸化けい素粉末を作成し、これを市販のグラファイト製型を有するホットプレス装置を使用して、真空度10Paのもと、プレス圧力9MPa～20MPaの種々条件で加圧しながら、焼結温度1150℃、1200℃、1250℃、1300℃に1時間保持して、直径50mm、厚み20mmの焼結体を製造した。

以下で説明する実施例1～5では、その直径に拘わらず、本発明で規制する嵩密度を満足する焼結体を発明例と記す。

【0052】

得られた焼結体の嵩密度を測定した。その結果をホットプレス条件と共に表1に示す。また、得られた焼結体の特性として、機械加工性、真空蒸着材料として使用した際の低スプラッシュ性及び均質性、割れ状況について調べた。その結果を表2に示す。

10

【0053】

機械加工性は、蒸着材料の寸法に切削加工する際の加工時間、割れや欠けの発生度合いについて評価し、低スプラッシュ性は、得られた蒸着膜の性状より評価し、均質性は、一定時間の昇華後の状況により評価し、それぞれ良好（ベター）を○印、普通（フェア）を△印、悪い（プアー）を×印で示す。

【0054】

表1の結果より、ホットプレス条件が、焼結温度1200℃～1300℃、プレス圧力15MPa以上の2つの条件を満足していない比較例1～5の焼結体の嵩密度は、いずれも1.52g/cm³以下である。これに対してこの発明の実施例8～10は、いずれも嵩密度は2.13g/cm³以上あり、特に1300℃の高温で焼結したものの嵩密度は、真密度に等しい2.24g/cm³が得られた。

20

【0055】

また、表2の焼結体の特性を調べた結果から、比較例1～5は、いずれも均質性は良いが、機械加工性に劣り、低スプラッシュ性が悪いことがわかる。これに対してこの発明の実施例8～10は、いずれも均質性が良く、優れた機械加工性と低スプラッシュ性を有することがわかる。

【0056】

なお、2.13g/cm³以上の密度を有する場合は、ガラス質であり、EBによる大量の入熱にて昇華する際に極稀に割れを生じることがある。

30

【0057】

【表1】

表 1

	No.	ホットプレス条件			嵩密度 (g/cm ³)
		加熱温度(°C)	保持時間(hr)	プレス圧力 (Mpa)	
比較例	1	1 1 5 0	1	1 0	1. 2 1
	2	1 1 5 0	1	1 5	1. 3 0
	3	1 1 5 0	1	2 0	1. 3 4
	4	1 2 0 0	1	1 0	1. 4 2
	5	1 2 5 0	1	9	1. 5 2
本発明	8	1 2 5 0	1	1 5	2. 1 3
	9	1 2 5 0	1	2 0	2. 1 8
	10	1 3 0 0	1	2 0	2. 2 4

10

20

【0058】

【表2】

表 2

	No.	焼結体の特性			蒸着時の割れ
		機械加工性	低スプラッシュ性	均質性	
比較例	1	△	×	○	なし
	2	△	×	○	なし
	3	△	×	○	なし
	4	△	△	○	なし
	5	△	△	○	なし
本発明	8	○	○	○	なし
	9	○	○	○	まれに発生
	10	○	○	○	まれに発生

30

40

【0059】

実施例 2

実施例 1 の本発明 No. 8 の実施により得られた一酸化けい素焼結体を直径 30 mm、厚さ 20 mm に切削加工したが、割れや欠けを生じることなく仕上げる事ができた。得られた一酸化けい素蒸着材料を使って、図 3 に示す真空蒸着装置 1 を用いて、蒸着膜を形

50

成した。

【0060】

真空蒸着装置11は、排気口15を有する真空室の底面に、底のない円筒体からなる水冷銅るつぼ12を設けてあり、このるつぼ12に対向した真空室の上部には外部の駆動源により回転する回転軸が配置され、その下端にガラス製の蒸着基板13を設けてある。

【0061】

この真空蒸着装置11は、チャンバー内を排気口15から排気して真空状態に維持し、水冷銅るつぼ12に一酸化けい素焼結体からなる蒸着材料14を挿入配置し、蒸着材料14表面に電子ビームを照射し加熱・昇華させ、蒸着基板13の下面に一酸化けい素を蒸着させることで、成膜を完了する。ここでは、水冷銅るつぼ12に5個の蒸着材料を下方から連続的に供給し、蒸着材料14を連続して加熱・昇華させることができ、蒸着基板13を図示しない基板交換装置によって断続的に交換することにより、連続的に複数枚の基板に一酸化けい素薄膜を成膜できる。

10

【0062】

この発明による一酸化けい素焼結体から作製した蒸着材料を用いる、連続的真空蒸着装置における成膜速度は、従来の非連続的蒸着装置による場合と同等であり、スプラッシュによるピンホールの発生はなく、良好な一酸化けい素膜を形成できた。

【0063】

蒸着中は、スプラッシュの発生は常に少なかったため、途中で蒸着を中断する必要もなく、また割れを生じることなく、5個の蒸着材料を連続的に使用することができた。

20

【0064】

実施例3

金属けい素粉末と二酸化けい素粉末との混合物からなる原料を、真空中で加熱・反応させて生成した一酸化けい素塊を破碎して、粒径（最小～最大）0.3～1.7mmのAタイプ、0.45mm以下のBタイプ、5～15mmのCタイプの3種類の一酸化けい素粉末を作製した。

【0065】

実施例1と同様に、グラファイト製型を有するホットプレス装置を使用して、真空度10Paのもと、プレス圧力9MPa、10MPa、15MPa、20MPaの4条件で加圧しながら、焼結温度1150℃、1200℃、1250℃、1300℃、1350℃の5条件で保持時間1時間でホットプレスを行い、直径50mm、厚み10mmの焼結体を製造した。得られた焼結体の嵩密度を測定した結果を表3に示す。

30

【0066】

表3の結果より、ホットプレス条件が、この発明で特定している焼結温度とプレス圧力の条件を満足していない比較例11～15の焼結体の嵩密度は、いずれも1.6g/cm³未満で、蒸着材料としても不適であり、またスパッタリングターゲット用焼結体として条件である嵩密度2.13g/cm³を満たしていない。

【0067】

これに対し、この発明の実施例21～26は、いずれも嵩密度は2.13g/cm³以上となり、さらに1300～1350℃の高温で焼結したものは、その嵩密度は真密度に等しい2.24g/cm³が得られた。

40

【0068】

【表3】

表 3

	No.	原料	ホットプレス条件			嵩密度 (g/cm ³)
			加熱温度(℃)	保持時間(hr)	プレス圧力 (Mpa)	
比較例	11	B	1 1 5 0	1	1 0	1. 2 1
	12	B	1 1 5 0	1	1 5	1. 3 0
	13	B	1 1 5 0	1	2 0	1. 3 4
	14	B	1 2 0 0	1	1 0	1. 4 2
	15	B	1 2 5 0	1	9	1. 5 2
本発明	21	A	1 2 5 0	1	1 5	2. 1 3
	22	A	1 2 5 0	1	2 0	2. 1 8
	23	A	1 3 0 0	1	1 5	2. 2 4
	24	A	1 3 5 0	1	2 0	2. 2 4
	25	B	1 3 0 0	1	2 0	2. 2 4
	26	C	1 3 0 0	1	2 0	2. 2 4

【0069】

実施例 4

金属けい素粉末と二酸化けい素粉末との混合物からなる原料を、真空中で加熱・反応させて生成した一酸化けい素塊を破碎して、粒径0.3～1.7mmのAタイプ、5～15mmのCタイプの2種類の一酸化けい素粉末を作製し、これを図1に示す二分割した内型を一体型の外型内に炭素繊維シートの緩衝材を介して組み込んだプレス用組合せ型を有するホットプレス装置を使用して、真空度10Paのもと、プレス圧力15MPa、20MPaの条件で加圧・成形しながら、焼結温度1250℃～1300℃に1時間保持して焼結し、直径110mm、高さ40mmの焼結体を製造した。

【0070】

また、比較例として、通常使用されている一体型のグラファイト製プレス型を使用して、焼結温度1150℃～1200℃に1時間保持して焼結し、直径110mm、高さ40mmの焼結体を製造した。

【0071】

得られた焼結体の嵩密度と割れ発生の有無を調べた結果を表4に示す。表4の結果より、従来の一体型のプレス型を使って焼結した比較例は、いずれも割れや欠けが多く発生しており、実用に供し得る大型の焼結体は得られないことがわかった。

【0072】

これに対し、この発明の実施例に示すように、分割した内型と一体型の外型を緩衝材を介在して組み合わせたプレス型を使用することにより、直径が110mmで嵩密度が2.13g/cm³以上の大型焼結体を割れや欠けを発生することなく、生産効率よく製造できることがわかる。

【0073】

得られた嵩密度が真密度の95%以上である2.13g/cm³以上の本発明によるス

パッタリング用ターゲットを使用し、スパッター速度、パーティクルの発生状況を調べた結果、極めて良好であることを確認した。

【0074】

【表4】

		原料	ホットプレス条件			嵩密度 (g/cm ³)	割れ
			温度 (°C)	時間 (Hr)	プレス圧力 (MPa)		
比較例	27	A	1150	1	15	1.32	多発
	28	C	1200	1	20	1.72	多発
本発明	29	A	1250	1	15	2.14	皆無
	30	C	1300	1	20	2.24	皆無

10

【0075】

実施例5

実施例4において、表4の原料のほかに真空蒸着法で製造した一酸化けい素原料を用い、これを破碎せずに機械加工により、直径がほぼ105mm、厚さがほぼ25mmの円板形状に切り出した。機械加工の際に、欠けが発生したが、これを2枚重ねてそのまま焼結原料として、温度1300℃、圧力20MPa、保持時間1時間のホットプレス条件で焼結した。その結果、嵩密度2.24g/cm³の焼結体を得られた。

20

【0076】

【発明の効果】

この発明にて得られる一酸化けい素焼結体は、実施例に示すごとく、少なくとも嵩密度が2.13g/cm³以上であり、ホットプレス条件によっては、一酸化けい素の真密度にほぼ等しい嵩密度が2.24g/cm³以上の一酸化けい素焼結体を得ることができる。

。

【0077】

この発明による一酸化けい素焼結体は、嵩密度が2.13g/cm³以上であり、機械加工性にすぐれ真空蒸着材料の種々形状に加工可能であり、また、組織が均質であり、真空蒸着材料としてすぐれた耐スプラッシュ性能を発揮する。すなわち、図3に示す真空蒸着装置のごとく、蒸着材料を連続供給して、真空蒸着を連続実施することが可能となる。

30

【0078】

この発明にて得られる一酸化けい素焼結体は、ホットプレス成形によりスパッタリング用ターゲット材として有用な直径が100mm以上で、ターゲットホルダーに形状が一致する所要形態の材料が得られ、かつ焼結体の組織が均質でその嵩密度が真密度の95%以上である2.13g/cm³以上の値が得られ、パーティクルの発生が少なく、良好なスパッタリング速度が得られる特長がある。

40

【図面の簡単な説明】

【図1】 この発明による製造方法で使用するプレス型の一部を破断して示す斜視説明図である。

【図2】 図1に示すプレス型において、内型を少し上方へずらした状態の縦断正面説明図である。

【図3】 この発明による焼結体から作られた蒸着用一酸化けい素材料を、水冷銅製のつばに連続供給して、電子ビームを照射しながら連続製膜するための真空蒸着装置の一例を示す説明図である。

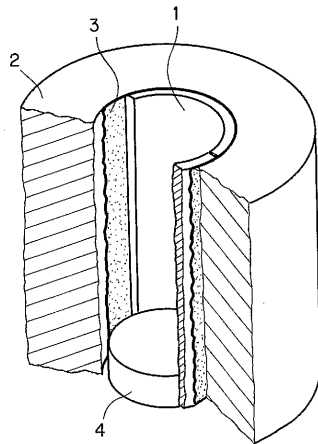
【符号の説明】

1 内型

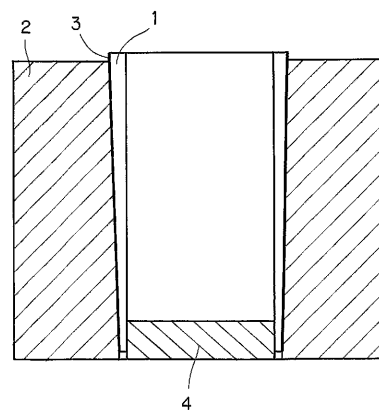
50

- 2 外型
- 3 緩衝材
- 4 下ポンチ
- 1 1 真空蒸着装置
- 1 2 るつぼ
- 1 3 蒸着基板
- 1 4 蒸着材料
- 1 5 排気口

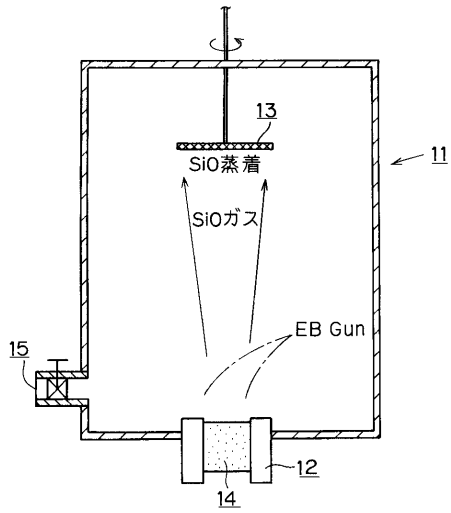
【図 1】
図1



【図 2】
図2



【図 3】



フロントページの続き

(72)発明者 岩瀬 敏治
兵庫県神戸市西区伊川谷町有瀬1 5 4 4 - 1

合議体

審判長 真々田 忠博

審判官 目代 博茂

審判官 齊藤 信人

(56)参考文献 特開平0 6 - 2 0 7 2 6 8 (J P , A)
特開平0 5 - 9 8 3 1 0 (J P , A)

(58)調査した分野(Int.Cl., D B名)
C04B 35/01, 35/14, 35/645
C23C 14/00-14/58, C30B 11/02