(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2016 年 9 月 29 日(29.09.2016)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2016/152349 A1

(51) 国際特許分類:
C04B 35/00 (2006.01) *C23C 14/34* (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2016/054839

(22) 国際出願日: 2016 年 2 月 19 日(19.02.2016)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:
特願 2015-059039 2015 年 3 月 23 日(23.03.2015) JP

(71) 出願人: ＪＸ金属株式会社(**JX NIPPON MINING & METALS CORPORATION**) [JP/JP]; 〒1008164 東京都千代田区大手町一丁目１番２号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 山口 洋平(**YAMAGUCHI Yohei**); 〒3191535 茨城県北茨城市華川町臼場１８７番地４ ＪＸ金属株式会社 磯原工場内 Ibaraki (JP). 角田 浩二(**KAKUTA Koji**); 〒3191535 茨城県北茨城市華川町臼場１８７番地４ ＪＸ金属株式会社 磯原工場内 Ibaraki (JP).

(74) 代理人: 小越 勇, 外(**OGOSHI Isamu** et al.); 〒1050001 東京都港区虎ノ門２丁目９番１４号 発明会館５階 小越国際特許事務所 Tokyo (JP).

(81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

[続葉有]

(54) **Title**: OXIDE SINTERED BODY, AND SPUTTERING TARGET COMPRISING THE OXIDE SINTERED BODY

(54) 発明の名称 : 酸化物焼結体及び該酸化物焼結体からなるスパッタリングターゲット

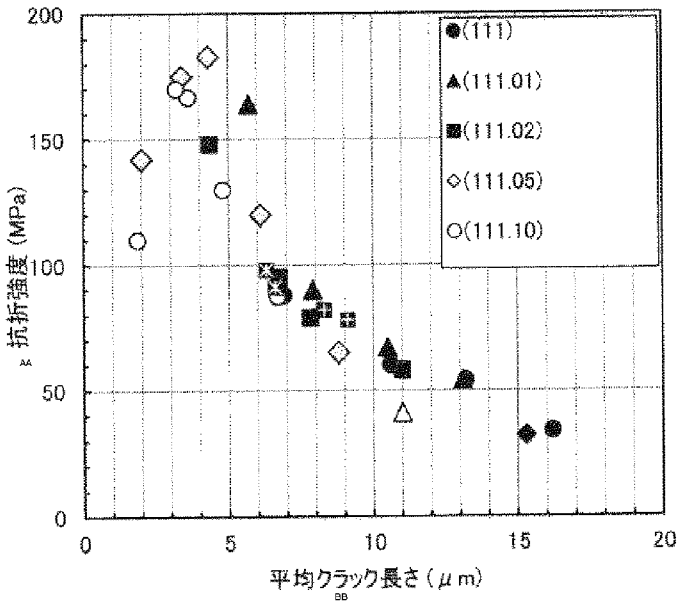


FIG. 2:
AA Flexural strength (MPa)
BB Average crack length (μm)

(57) **Abstract**: This oxide sintered body comprises indium (In), gallium (Ga), zinc (Zn), oxygen (O), and unavoidable impurities, and is an IGZO sintered body characterized by having an average length of cracks existing in the sintered body not smaller than 3 μm but not larger than 15 μm. The present invention addresses the problem of providing a sputtering target that enables forming of excellent thin films by reducing the occurrence of cracking in the target and reducing generation of particles when depositing is performed by DC sputtering.

(57) 要約: インジウム（Ｉｎ）、ガリウム（Ｇａ）、亜鉛（Ｚｎ）、酸素（Ｏ）及び不可避的不純物からなる酸化物焼結体であって、前記焼結体に存在するクラックの平均長さが３μｍ以上、１５μｍ以下であることを特徴とするＩＧＺＯ焼結体。ＤＣスパッタリングによる成膜時にターゲット割れやパーティクル発生を低減し、良好な薄膜を形成することができるスパッタリングターゲットを提供することを課題とする。

WO 2016/152349 A1

添付公開書類:

— 国際調査報告（条約第 21 条(3)）

明　細　書

発明の名称 ：

酸化物焼結体及び該酸化物焼結体からなるスパッタリングターゲット

技術分野

[0001] 本発明は、インジウム（Ｉｎ）、ガリウム（Ｇａ）、亜鉛（Ｚｎ）、酸素（Ｏ）、及び不可避的不純物からなる酸化物（「ＩＧＺＯ」と一般的に称呼されている。必要に応じて、この「ＩＧＺＯ」を用いて説明する）に関し、特に、ＩＧＺＯ焼結体及び該酸化物焼結体からなるスパッタリングターゲットに関する。

背景技術

[0002] 従来、ＦＰＤ（フラットパネルディスプレイ）において、そのバックプレーンのＴＦＴ（薄膜トランジスタ）に、α－Ｓｉ（アモルファスシリコン）が用いられてきた。しかし、α－Ｓｉでは十分な電子移動度が得られず、近年では、α－Ｓｉよりも電子移動度が高いＩｎ－Ｇａ－Ｚｎ－Ｏ系酸化物（ＩＧＺＯ）を用いたＴＦＴの研究開発が行われている。そして、ＩＧＺＯ－ＴＦＴを用いた次世代高機能フラットパネルディスプレイが一部実用化され、注目を集めている。

[0003] ＩＧＺＯ膜は、主として、ＩＧＺＯ焼結体から作製されるターゲットをスパッタリングして成膜される。ＩＧＺＯ焼結体には、Ｉｎ：Ｇａ：Ｚｎ＝１：１：１（原子数比）の（１１１）組成からなる焼結体が用いることができる。しかし、この（１１１）組成からなる焼結体は、結晶粒の成長が速いために、結晶粒径の調整が難しいという問題がある。結晶粒径が大きくなり過ぎると、結晶粒径でクラックが生じやすく、焼結体の強度が著しく低下することになる。

[0004] 特許文献１～６には、基本的に（１１１）組成からなるＩＧＺＯ焼結体において、特有の焼結方法によって、その焼結体の抗折強度を高めることが記載されている。具体的にはマイクロ波加熱炉を用いたり、通常の一般的な抵

抗加熱ヒーターを用いた電気炉の場合は焼結時間を１～２時間と極端に短くしたり等により、結晶粒の成長を抑制して抗折強度を高めるものである。しかし、このマイクロ波加熱は、急速加熱や短時間焼結が可能であるが、局部加熱による加熱ムラが発生したり、また炉の大きさが限定されるために焼結体の寸法も制限されたり等の問題があり、大量生産には不向きである。また、電気炉で焼結時間を極端に短くした場合、結晶粒の成長は抑制できるが、焼結体の表層と内部とで組織が不均一となったり、焼結体に反りや歪みが発生しやすくなったり、著しい歩留まり低下を招く。

[0005] また、ＩＧＺＯ焼結体は、安定したＤＣスパッタリングを可能とするために、焼結体のバルク抵抗が十分に低いことが求められる。一般にバルク抵抗が高いとＤＣスパッタリングが困難となり、また、ＤＣスパッタリングが可能であったとしても、実用的な成膜速度を得るためには大きな電力を投入する必要がある。さらに、バルク抵抗が高いと異常放電が発生する確率も高まり、パーティクルの発生による膜への悪影響やスパッタリングターゲットの割れや亀裂を招くという問題がある。なお、特許文献１～６には、その実施例にＤＣスパッタリングによる成膜を実施したとの記載はあるが、焼結体のバルク抵抗に関する具体的な記載はない。

先行技術文献

特許文献

[0006] 特許文献1：特開２０１３－１２９５４５号公報

特許文献2：特開２０１４－４０３４８号公報

特許文献3：特開２０１４－２４７３８号公報

特許文献4：特開２０１４－１１４４７３号公報

特許文献5：特開２０１４－１０５３８３号公報

特許文献6：特開２０１４－１２５４２２号公報

発明の開示

発明が解決しようとする課題

[0007] 本発明は、抗折強度が高く、かつ、バルク抵抗の低いＩＧＺＯ酸化物焼結体を提供することを課題とする。該焼結体からなるスパッタリングターゲットは、成膜時にターゲットの割れやパーティクルの発生を格段に抑制することができ、良好な薄膜を形成することが可能となる。

課題を解決するための手段

[0008] 上記の課題を解決するために、本発明者らは鋭意研究を行った結果、ＩＧＺＯ焼結体に発生するクラックに着目し、クラックの長さを制御することにより、焼結体（スパッタリングターゲット）の抗折強度を高めることができるとともに、バルク抵抗を低くすることができ、その結果、良好なＤＣスパッタリングが可能となり、得られる薄膜の品質を向上することができるとの知見を得た。

本発明者らは上記の知見に基づき、下記の発明を提供する。

１）インジウム（Ｉｎ）、ガリウム（Ｇａ）、亜鉛（Ｚｎ）、酸素（Ｏ）及び不可避的不純物からなる酸化物焼結体であって、前記焼結体に存在するクラックの平均長さが３μｍ以上、１５μｍ以下であることを特徴とするＩＧＺＯ焼結体。

２）前記焼結体に存在するクラックの最大長さが６μｍ以上、４５μｍ以下であることを特徴とする上記１）記載のＩＧＺＯ焼結体。

３）抗折強度が５０ＭＰａ以上、かつ、バルク抵抗が１００ｍΩｃｍ以下であることを特徴とする上記１）又は２）記載のＩＧＺＯ焼結体。

４）Ｉｎ、Ｇａ、Ｚｎの原子数比が、以下の式を満たすことを特徴とする上記１）～３）のいずれか一に記載のＩＧＺＯ焼結体。

０．３１４≦Ｉｎ／（Ｉｎ＋Ｇａ＋Ｚｎ）≦０．３４２

０．３１４≦Ｇａ／（Ｉｎ＋Ｇａ＋Ｚｎ）≦０．３４２

０．３２５≦Ｚｎ／（Ｉｎ＋Ｇａ＋Ｚｎ）≦０．３６４

５）平均結晶粒径が２２μｍ以下であることを特徴とする上記１）～４）のいずれか一に記載のＩＧＺＯ焼結体。

６）焼結体密度が６．１０ｇ／ｃｍ^{3}以上であることを特徴とする上記１）

～５）のいずれか一に記載のＩＧＺＯ焼結体。

７）上記１）～６）のいずれか一に記載のＩＧＺＯ焼結体からなる平板又は円筒形のスパッタリングターゲット。

発明の効果

[0009] 本発明は、インジウム（Ｉｎ）、ガリウム（Ｇａ）、亜鉛（Ｚｎ）、酸素（Ｏ）、及び不可避的不純物からなるＩＧＺＯ系の酸化物焼結体において、焼結体に存在するクラックの長さを適切に制御することにより、高い抗折強度と低いバルク抵抗を両立することができ、これにより、パーティクルの発生が少なく、安定したＤＣスパッタリングが可能となるという優れた効果を有する。

図面の簡単な説明

[0010] [図1]クラック本数と抗折強度の関係を示す図である。

[図2]平均クラック長さと抗折強度の関係を示す図である。

[図3]最大クラック長さと抗折強度の関係を示す図である。

[図4]平均クラック長さとバルク抵抗の関係を示す図である。

[図5]最大クラック長さとバルク抵抗の関係を示す図である。

[図6]クラック本数及び長さの計測に関する図である。

発明を実施するための形態

[0011] ＩＧＺＯ焼結体では、結晶粒界にクラックが生じ易く、これにより、焼結体の強度が著しく低下するという問題があり、焼結体に存在するクラックの本数を低減することが抗折強度の向上につながることが考えられた。しかし、焼結体のクラックの本数と抗折強度との関係をプロットしていくと、図１のように焼結体のクラックの本数と抗折強度とは必ずしも相関せず、クラックの本数が多くても抗折強度が高い場合があった。

[0012] クラックと抗折強度との関係についてさらに研究を進めたところ、クラックの本数が多くても、その長さが一定範囲に制御されていれば、高い抗折強度を達成できることを見出した。さらに、このクラックの長さの制御は、高い抗折強度と共に低いバルク抵抗をも達成できることを見出した。このような

知見に基づき、本発明は、クラックの長さ、特には、その平均長さと最大長さに特徴と有するものである。

[0013] 本発明の焼結体は、インジウム（Ｉｎ）、ガリウム（Ｇａ）、亜鉛（Ｚｎ）、酸素（Ｏ）及び不可避的不純物からなり、焼結体に存在するクラックの平均長さが３μｍ以上、１５μｍ以下であることを特徴とする。クラックの平均長さが１５μｍを超えると、焼結体の抗折強度が低下し、一方、クラックの平均長さが３μｍ未満になると、焼結体のバルク抵抗が高くなるため、好ましくない。

[0014] また本発明は、焼結体に存在するクラックの最大長さが６μｍ以上、４５μｍ以下であることが好ましい。クラックの最大長さが４５μｍを超えると、焼結体の抗折強度が低下し、一方、クラックの最大長さが６μｍ未満になると、焼結体のバルク抵抗が高くなるため好ましくない。なお、本発明は、クラックの本数については特に制限はなく、クラックの長さが一定の範囲内であれば、高強度かつ低抵抗が得られる。

[0015] 本発明において、クラックの長さは、焼結体（スパッタリングターゲット）の断面を走査型電子顕微鏡（ＳＥＭ）で観察し、ＳＥＭ画像（視野：９０μｍ×１２０μｍ）に存在するクラックの長さを計測し、その長さの平均値及び最大値を求める。具体的には矩形平板ターゲットの場合、ターゲットの中央付近及び四隅の場所から合計５箇所採取してサンプルとし、各サンプルについてターゲット断面の任意の表面について１００倍のＳＥＭ像を撮影し、撮影した画像上の９０μｍ×１２０μｍの領域内におけるクラックの長さ（及び本数）を計測し、５箇所における平均値と最大値を求める。

[0016] クラックは、直線状のクラック、折れ線上のクラック、曲線状のクラック及びそれらのクラックが途中から複数に分岐している等の場合がある。分岐のないクラックについては、ＳＥＭ像上でのそのクラックに沿った全長を計測してクラック長さとする。一方分岐を有するクラックについては、図６に示すようにクラックの端部から１又は２以上の分岐点を経て他の端部へ至る最も長い部分（１に相当）を１本とし、それ以外の部分（２、３に相当）につ

いては、それぞれの端部とその分岐点とを結ぶ部分を１本ずつとし、それぞれのクラックについて、分岐がないクラックの場合と同様長さを計測する。

[0017] 本発明の焼結体は、抗折強度が５０ＭＰａ以上であり、かつ、バルク抵抗が１００ｍΩｃｍ以下であることを特徴とする。抗折強度が５０ＭＰａ未満であるとスパッタリング中にターゲットに割れが発生することがあり、また、バルク抵抗が１００ｍΩｃｍ超であると、ＤＣスパッタリングが可能な場合であっても、長時間のスパッタ中には異常放電が発生することがあり、場合によってはＤＣでは放電が起こらず、ＲＦスパッタを用いざるを得ないことがある。

[0018] また、本発明において、酸化物焼結体のＩｎ、Ｇａ及びＺｎの原子数比は、以下の式を満たすことが好ましい。

０．３１４≦Ｉｎ／（Ｉｎ＋Ｇａ＋Ｚｎ）≦０．３４２

０．３１４≦Ｇａ／（Ｉｎ＋Ｇａ＋Ｚｎ）≦０．３４２

０．３２５≦Ｚｎ／（Ｉｎ＋Ｇａ＋Ｚｎ）≦０．３６４

ＩＧＺＯ焼結体において、（１１１）組成からＺｎ－ｒｉｃｈの組成とすることにより高強度かつ安定したＤＣスパッタリングが可能なバルク抵抗を付与することができる。

なお、原料粉末の配合、混合、焼結等の際に、各成分量が変動することがあり、例えば、目標組成がＩｎ：Ｇａ：Ｚｎ＝１：１：１の場合、Ｉｎ：Ｇａ：Ｚｎ＝１±０．０２：１±０．０２：１±０．０２の変動が生じるので、事実上、Ｚｎ－ｒｉｃｈとならない場合があるが、そのこと自体が発明を否定する根拠とならない。

[0019] 本発明の酸化物焼結体は、平均結晶粒径が２２μｍ以下であることが好ましい。平均粒径を上記数値範囲内とすることで機械的強度を高めることができる。平均粒径が２２μｍ超であると、機械的強度が低下して、スパッタリング時に過度な電力が投入された場合、スパッタリングターゲット（焼結体）と該ターゲットをボンディングしているバッキングプレートの熱膨張差によって生じる応力により、焼結体に割れが発生する可能性がある。

[0020] また、本発明の酸化物焼結体は、焼結体密度が６．１０ｇ／ｃｍ^{3}以上であることが好ましい。本発明の酸化物焼結体をスパッタリングターゲットとして使用した場合、焼結体の高密度化は、スパッタ膜の均一性を高め、また、スパッタリングの際パーティクルの発生を著しく低減することができるという優れた効果を有する。

[0021] 本発明の酸化物焼結体の製造工程の代表例を示すと、次のようになる。

原料として、酸化インジウム（In_2O_3）、酸化ガリウム（Ga_2O_3）、及び酸化亜鉛（ＺｎＯ）を用意する。不純物による電気特性への悪影響を避けるため、純度４Ｎ以上の原料を用いることが望ましい。各々の原料を所定の組成比となるように秤量する。なお、これらの原料には不可避的に含有される不純物が含まれる。

[0022] 次に、酸化物焼結体が所定の組成比となるように、各原料を添加、混合する。このとき混合が不十分であると、ターゲット中の各成分が偏析して、スパッタリング中にアーキング等の異常放電の原因となったり、パーティクル発生の原因となったりするため、混合は十分に行うことが好ましい。さらに、混合粉を微粉砕、造粒することにより、混合粉の成形性及び焼結性を向上させ、高密度の焼結体を得ることができる。混合、粉砕の手段としては、例えば、市販のミキサーやボールミル、ビーズミル等を使用することができ、造粒の手段としては、例えば市販のスプレードライヤーを用いることができる。

[0023] 次に、混合粉末を金型に充填し、面圧４００～１０００ｋｇｆ／ｃｍ^2、１～３分保持の条件で一軸プレスして、平板状の成形体を得る。面圧４００ｋｇｆ／ｃｍ^{2}未満であると十分な密度の成形体を得ることができない。また、過度な面圧を加えても成形体の密度はある一定の値以上は向上しにくくなること、及び一軸プレスでは原理的に成形体内に密度分布が生じやすく、焼結時の変形や割れの原因となることから、１０００ｋｇｆ／ｃｍ^{2}以上の面圧は生産上特に必要とされない。

[0024] 次に、この成型体をビニールで２重に真空パックし、圧力１５００～４００

０ｋｇｆ／ｃｍ^2、１～３分保持の条件でＣＩＰ（冷間等方圧加圧法）を施す。圧力１５００ｋｇｆ／ｃｍ^{2}未満であると、十分なＣＩＰの効果を得ることができず、一方４０００ｋｇｆ／ｃｍ^{2}以上の圧力を加えても、成形体の密度はある一定の値以上は向上しにくくなるため、４０００ｋｇｆ／ｃｍ^{2}以上の面圧は生産上特に必要とされない。

[0025] 次に、成形体を温度１２５０～１４３０℃、保持時間１０～２４時間、大気雰囲気又は酸素雰囲気で焼結を行う。焼結温度が１２５０℃よりも低いと、焼結体から酸素が抜けにくくなり、酸素欠陥濃度が低下し、キャリア濃度が低下する（すなわち、バルク抵抗が増加する）ため、好ましくない。一方、焼結温度が１４３０℃以上であると焼結体中の結晶粒のサイズが大きくなり過ぎて、焼結体の機械的強度を低下させる恐れがある。また、保持時間が１０時間未満であると十分な密度の焼結体を得ることができず、保持時間が２４時間より長いと、生産コストの観点から好ましくない。特にクラックの長さを制御する上で重要なことは、焼結体の組成との関係で焼結温度を適切に調整することである。さらに、焼結体を最高焼結温度から冷却する際の降温速度は、１℃／ｍｉｎ～３℃／ｍｉｎであることが好ましい。降温速度が遅すぎると、降温過程においても結晶粒の成長が進行して粒径が大きくなりすぎ、ＩＧＺＯのような層状構造で結晶構造の異方性が大きい焼結体の場合には、クラックの生成を誘発し焼結体強度の低下を招く恐れがある。一方、降温速度が速すぎると、焼結体内外の熱膨張差により焼結体中に大きな残留応力が生じ、焼結体の強度低下や焼結時の割れを招く恐れがある。

[0026] 成形・焼結工程においては、上述した方法以外にも、ＨＰ（ホットプレス）やＨＩＰ（熱間等方圧加圧法）を用いることができる。以上のようにして得られた焼結体は、研削、研磨などの機械加工によりターゲット形状とすることで、スパッタリングターゲットを作成することができる。なお、酸化物半導体膜の作製に際しては、上記のようにして得られたスパッタリングターゲットを、所定の条件でスパッタリングを実施して成膜し、必要に応じて、この膜を所定の温度でアニールすることで、酸化物半導体膜を得ることができ

る。

[0027] 本発明において、抗折強度はＪＩＳ　Ｒ１６０１：２００８に準拠して３点曲げ試験で測定する。具体的には、試料全長：４０ｍｍ±０．１ｍｍ、幅：４ｍｍ±０．１ｍｍ、厚さ：３ｍｍ±０．１ｍｍ、支点間距離：３０ｍｍ±０．１ｍｍ、クロスヘッドスピード：０．５ｍｍ／ｍｉｎとし、１０個の試料についての平均値とする。

[0028] また、平均粒径は矩形平板ターゲットの中央付近及び四隅の場所から合計５箇所採取してサンプルとする。各サンプルについてターゲット断面の任意の表面について３００倍のＳＥＭ像を撮影し、撮影した画像上に５本の直線を引いて、各直線が結晶粒子と交わる長さをコード長とし、これらコード長の平均値を求め、これに係数１．７８を掛けた値を結晶粒径とする。

[0029] また、焼結体密度はアルキメデス法、バルク抵抗は四探針法により、それぞれ矩形平板ターゲットの中央付近及び四隅の場所から５箇所採取したサンプルの各箇所での測定結果を、測定箇所数で割って平均値として求める。

実施例

[0030] 以下、実施例および比較例に基づいて説明する。なお、本実施例はあくまで一例であり、この例によって何ら制限されるものではない。すなわち、本発明は特許請求の範囲によってのみ制限されるものであり、本発明に含まれる実施例以外の種々の変形を包含するものである。

[0031] （実施例１）

In_2O_3粉、Ga_2O_3粉、ＺｎＯ粉を、焼結体の組成比がＩｎ、Ｇａ及びＺｎの原子比で１．００：１．００：１．００となるように秤量した後、これらの粉末を湿式で混合・微粉砕し、その後、スプレードライヤーで乾燥・造粒して、混合粉末を得た。次に、この混合粉末を面圧４００～１０００ｋｇｆ／ｃｍ^{2}で一軸プレスして成形体を得た。次に得られた成形体をビニールで２重に真空パックし、１５００～４０００ｋｇｆ／ｃｍ^{2}でＣＩＰ成型した後、酸素雰囲気中、温度１３５０℃で１５時間焼結し、その後、１．６７℃／ｍｉｎで５００℃まで降温した後、炉内で放冷した。

[0032] このようにして得られたＩＧＺＯ焼結体をＳＥＭで観察したところ、ＳＥＭ像の９０μｍ×１２０μｍ視野中に存在するクラックの平均長さは１３．２μｍであり、最大長さは４１．９μｍであった。また、このとき、焼結体の抗折強度は５４ＭＰａであり、バルク抵抗は７８．２ｍΩｃｍと、高強度かつ低抵抗のものが得られた。また、焼結体の平均粒径は２１．８μｍであり、焼結体密度は６．３４ｇ／ｃｍ^{3}と高密度のものが得られた。以上の結果を表１に示す。

[0033]

[表1]

	焼結体組成			焼結温度	焼結時間	焼結雰囲気	降温速度	粒径	平均クラック長	最大クラック長	抗折強度	バルク抵抗	密度	クラック数
	In	Ga	Zn	(℃)	(hr)		(℃/min)	(μm)	(μm)	(μm)	(MPa)	(mΩ·cm)	(g/cm3)	(本)
比較例1				1430	15	酸素	1.67	34.9	16.2	90.8	34	33.5	6.33	69
実施例1				1350	15	酸素	1.67	21.8	13.2	41.9	54	76.2	6.34	96
比較例2	1.00	1.00	1.00	1300	15	酸素	1.67	17.9	10.6	31.8	60	108.3	6.34	75
比較例3				1250	15	酸素	1.67	11.1	6.9	23.5	88	202.4	6.32	92
実施例2				1430	15	酸素	1.67	20.5	13.1	37.3	54	35.7	6.32	80
実施例3				1350	15	酸素	1.67	15.6	10.5	28.8	67	63.0	6.34	120
実施例4	1.00	1.00	1.01	1300	15	酸素	1.67	10.9	7.9	22.2	90	89.2	6.33	145
比較例4				1250	15	酸素	1.67	6.3	5.7	12.8	164	121.9	6.31	32
実施例5				1430	15	酸素	1.67	18.1	11.0	32.3	58	34.5	6.32	86
実施例6				1350	15	酸素	1.67	12.2	7.8	25.7	79	59.8	6.34	141
実施例7	1.00	1.00	1.02	1300	15	酸素	1.67	10.5	6.7	21.0	95	82.8	6.33	107
比較例5				1250	15	酸素	1.67	7.2	4.3	11.6	146	137.2	6.30	50
実施例8				1430	15	酸素	1.67	13.7	8.8	26.3	65	26.3	6.34	113
実施例9				1350	15	酸素	1.67	10.5	6.1	18.5	120	39.5	6.33	79
実施例10	1.00	1.00	1.05	1300	15	酸素	1.67	8.2	4.3	11.4	163	53.6	6.32	60
実施例11				1275	15	酸素	1.67	6.9	3.4	9.0	175	89.7	6.33	46
比較例6				1250	15	酸素	1.67	5.5	2.0	4.2	142	129.8	6.20	23
実施例12				1430	15	酸素	1.67	9.9	6.7	23.5	87	21.5	6.33	138
実施例13				1350	15	酸素	1.67	8.0	4.8	17.9	130	35.0	6.32	125
実施例14	1.00	1.00	1.10	1300	15	酸素	1.67	6.2	3.6	10.4	167	46.3	6.32	103
実施例15				1275	15	酸素	1.67	5.0	3.2	7.5	170	85.0	6.31	65
比較例7				1250	15	酸素	1.67	5.3	1.9	3.7	110	140.8	6.08	33
実施例16	1.00	1.00	1.00	1350	15	大気	1.67	14.0	9.1	24.8	78	30.9	6.33	133
実施例17	1.00	1.00	1.00	1300	15	大気	1.67	11.0	8.3	23.5	82	46.1	6.33	120
実施例18	1.00	1.00	1.02	1350	15	大気	1.67	10.3	6.8	16.9	91	20.2	6.33	114
実施例19	1.00	1.00	1.02	1300	15	大気	1.67	9.0	6.3	15.9	98	30.3	6.33	98
比較例8	1.00	1.00	1.00	1350	15	酸素	0.5	27.7	15.3	48.8	32	80.7	6.31	125
比較例9	1.00	1.00	1.00	1350	15	酸素	5.0	17.4	11.0	32.0	41	65.3	6.32	128

[0034] （比較例１～３）

In_2O_3粉、Ga_2O_3粉、ＺｎＯ粉を、焼結体の組成比がＩｎ、Ｇａ及びＺｎの原子比で１．００：１．００：１．００となるように秤量した後、これらの粉末を湿式で混合・微粉砕し、その後、スプレードライヤーで乾燥・造粒して、混合粉末を得た。次に、この混合粉末を面圧４００～１０００ｋｇｆ／ｃｍ^{2}で一軸プレスして成形体を得た。次に得られた成形体をビニールで２重に真空パックし、１５００～４０００ｋｇｆ／ｃｍ^{2}でＣＩＰ成型した後、酸素雰囲気中、温度１４３０℃（比較例１）、１３００℃（比較例２）、１２５０℃（比較例３）で、１５時間焼結し、その後、それぞれ１．６７℃／ｍｉｎで５００℃まで降温した後、炉内で放冷した。

[0035] 比較例１の条件で得られたＩＧＺＯ焼結体は、ＳＥＭ像（視野：９０μｍ×１２０μｍ）におけるクラックの平均長さが１６．２μｍ、最大長さが５０．８μｍと、本発明の要件を満たさず、焼結体の抗折強度が３４ＭＰａと低かった。比較例２～３の条件で得られたＩＧＺＯ焼結体は、クラックの長さは本発明の要件を満たしており、抗折強度が高いものの、バルク抵抗が１００ｍΩｃｍ超と高い値を示した。

[0036] （実施例２－４、比較例４）

In_2O_3粉、Ga_2O_3粉、ＺｎＯ粉を、焼結体の組成比がＩｎ、Ｇａ及びＺｎの原子比で１．００：１．００：１．０１となるように秤量した後、これらの粉末を湿式で混合・微粉砕し、その後、スプレードライヤーで乾燥・造粒して、混合粉末を得た。次に、この混合粉末を面圧４００～１０００ｋｇｆ／ｃｍ^{2}で一軸プレスして成形体を得た。次に得られた成形体をビニールで２重に真空パックし、１５００～４０００ｋｇｆ／ｃｍ^{2}でＣＩＰ成型した後、酸素雰囲気中、温度１４３０℃（実施例２）、１３５０℃（実施例３）、１３００℃（実施例４）、１２５０℃（比較例４）で、１５時間焼結し、その後、それぞれ１．６７℃／ｍｉｎで５００℃まで降温し、その後は炉内で放冷した。

[0037] 実施例２～４の条件で得られたＩＧＺＯ焼結体は、ＳＥＭ像（視野：９０

μｍ×１２０μｍ）におけるクラックの長さはいずれも本発明の要件を満たしており、いずれも抗折強度が５０ＭＰａ以上、バルク抵抗が１００ｍΩｃｍ以下と、高強度かつ低抵抗のものが得られた。また、焼結体の平均粒径は２２μｍ以下であり、焼結体密度は６．１０ｇ／ｃｍ^{3}以上と高密度のものが得られた。比較例４の条件で得られたＩＧＺＯ焼結体は、クラックの長さは本発明の要件を満たしており、抗折強度が高いものの、バルク抵抗が１００ｍΩｃｍ超と高い値を示した。

[0038] （実施例５－７、比較例５）

In_2O_3粉、Ga_2O_3粉、ＺｎＯ粉を、焼結体の組成比がＩｎ、Ｇａ及びＺｎの原子比で１．００：１．００：１．０２となるように秤量した後、これらの粉末を湿式で混合・微粉砕し、その後、スプレードライヤーで乾燥・造粒して、混合粉末を得た。次に、この混合粉末を面圧４００～１０００ｋｇｆ／ｃｍ^{2}で一軸プレスして成形体を得た。次に得られた成形体をビニールで２重に真空パックし、１５００～４０００ｋｇｆ／ｃｍ^{2}でＣＩＰ成型した後、酸素雰囲気中、温度１４３０℃（実施例５）、１３５０℃（実施例６）、１３００℃（実施例７）、１２５０℃（比較例５）で、１５時間焼結し、その後、それぞれ１．６７℃／ｍｉｎで５００℃まで降温し、その後は炉内で放冷した。

[0039] 実施例５～７の条件で得られたＩＧＺＯ焼結体は、ＳＥＭ像（視野：９０μｍ×１２０μｍ）におけるクラックの長さはいずれも本発明の要件を満たしており、いずれも抗折強度が５０ＭＰａ以上、バルク抵抗が１００ｍΩｃｍ以下と、高強度かつ低抵抗のものが得られた。また、焼結体の平均粒径は２２μｍ以下であり、焼結体密度は６．１０ｇ／ｃｍ^{3}以上と高密度のものが得られた。比較例５の条件で得られたＩＧＺＯ焼結体は、クラックの長さは本発明の要件を満たしており、抗折強度が高いものの、バルク抵抗が１００ｍΩｃｍ超と高い値を示した。

[0040] （実施例８－１１、比較例６）

In_2O_3粉、Ga_2O_3粉、ＺｎＯ粉を、焼結体の組成比がＩｎ、Ｇａ及びＺ

ｎの原子比で１．００：１．００：１．０５となるように秤量した後、これらの粉末を湿式で混合・微粉砕し、その後、スプレードライヤーで乾燥・造粒して、混合粉末を得た。次に、この混合粉末を面圧４００～１０００ｋｇｆ／ｃｍ^{2}で一軸プレスして成形体を得た。次に得られた成形体をビニールで２重に真空パックし、１５００～４０００ｋｇｆ／ｃｍ^{2}でＣＩＰ成型した後、酸素雰囲気中、温度１４３０℃（実施例８）、１３５０℃（実施例９）、１３００℃（実施例１０）、１２７５℃（実施例１１）、１２５０℃（比較例６）で、１５時間焼結し、その後、それぞれ１．６７℃／ｍｉｎで５００℃まで降温し、その後は炉内で放冷した。

[0041] 実施例８～１１の条件で得られたＩＧＺＯ焼結体は、ＳＥＭ像（視野：９０μｍ×１２０μｍ）におけるクラックの長さはいずれも本発明の要件を満たしており、いずれも抗折強度が５０ＭＰａ以上、バルク抵抗が１００ｍΩｃｍ以下と、高強度かつ低抵抗のものが得られた。また、焼結体の平均粒径は２２μｍ以下であり、焼結体密度は６．１０ｇ／ｃｍ^{3}以上と高密度のものが得られた。比較例６の条件で得られたＩＧＺＯ焼結体は、クラックの長さは本発明の要件を満たしており、抗折強度が高いものの、バルク抵抗が１００ｍΩｃｍ超と高い値を示した。

[0042]（実施例１２－１５、比較例７）

In_2O_3粉、Ga_2O_3粉、ＺｎＯ粉を、焼結体の組成比がＩｎ、Ｇａ及びＺｎの原子比で１．００：１．００：１．１０となるように秤量した後、これらの粉末を湿式で混合・微粉砕し、その後、スプレードライヤーで乾燥・造粒して、混合粉末を得た。次に、この混合粉末を面圧４００～１０００ｋｇｆ／ｃｍ^{2}で一軸プレスして成形体を得た。次に得られた成形体をビニールで２重に真空パックし、１５００～４０００ｋｇｆ／ｃｍ^{2}でＣＩＰ成型した後、酸素雰囲気中、温度１４３０℃（実施例１２）、１３５０℃（実施例１３）、１３００℃（実施例１４）、１２７５℃（実施例１５）、１２５０℃（比較例７）で、１５時間焼結し、その後は、それぞれ１．６７℃／ｍｉｎで５００℃まで降温し、その後は炉内で放冷した。

[0043] 実施例１２～１５の条件で得られたＩＧＺＯ焼結体は、ＳＥＭ像（視野：９０μｍ×１２０μｍ）におけるクラックの長さはいずれも本発明の要件を満たしており、いずれも抗折強度が５０ＭＰａ以上、バルク抵抗が１００ｍΩｃｍ以下と、高強度かつ低抵抗のものが得られた。また、焼結体の平均粒径は２２μｍ以下であり、焼結体密度は６．１０ｇ／ｃｍ^{3}以上と高密度のものが得られた。比較例７の条件で得られたＩＧＺＯ焼結体は、クラックの長さは本発明の要件を満たしており、抗折強度が高いものの、バルク抵抗が１００ｍΩｃｍ超と高い値を示した。

[0044] （実施例１６－１９）

In_2O_3粉、Ga_2O_3粉、ＺｎＯ粉を、焼結体の組成比が、表１に記載されるＩｎ、Ｇａ及びＺｎの原子比となるように秤量した後、これらの粉末を湿式で混合・微粉砕し、その後、スプレードライヤーで乾燥・造粒して、混合粉末を得た。次に、この混合粉末を面圧４００～１０００ｋｇｆ／ｃｍ^{2}で一軸プレスして成形体を得た。次に得られた成形体をビニールで２重に真空パックし、１５００～４０００ｋｇｆ／ｃｍ^{2}でＣＩＰ成型した後、大気雰囲気中、温度１３５０℃（実施例１６、１８）、１３００℃（実施例１７、１９）で、１５時間焼結し、その後、それぞれ１．６７℃／ｍｉｎで５００℃まで降温し、その後は炉内で放冷した。

[0045] 実施例１６～１８の条件で得られたＩＧＺＯ焼結体は、ＳＥＭ像（視野：９０μｍ×１２０μｍ）におけるクラックの長さはいずれも本発明の要件を満たしており、いずれも抗折強度が５０ＭＰａ以上、バルク抵抗が１００ｍΩｃｍ以下と、高強度かつ低抵抗のものが得られた。また、焼結体の平均粒径は２２μｍ以下であり、焼結体密度は６．１０ｇ／ｃｍ^{3}以上と高密度のものが得られた。

[0046] （比較例８、９）

In_2O_3粉、Ga_2O_3粉、ＺｎＯ粉を、焼結体の組成比が、表１に記載されるＩｎ、Ｇａ及びＺｎの原子比となるように秤量した後、これらの粉末を湿式で混合・微粉砕し、その後、スプレードライヤーで乾燥・造粒して、混合

粉末を得た。次に、この混合粉末を面圧４００～１０００ｋｇｆ／ｃｍ^{2}で一軸プレスして成形体を得た。次に得られた成形体をビニールで２重に真空パックし、１５００～４０００ｋｇｆ／ｃｍ^{2}でＣＩＰ成型した後、大気雰囲気中、温度１３５０℃で１５時間焼結し、その後、比較例８では０．５℃／ｍｉｎで５００℃まで降温し、その後は炉内で放冷した。一方、比較例９では、５℃／ｍｉｎで５００℃まで降温し、その後は炉内で放冷した。

[0047] 比較例８の条件で得られたＩＧＺＯ焼結体は、クラックの長さは本発明の要件を満たさなかった。これは、先述の通り、降温過程においても結晶粒成長が促進されることが原因と考えられる。一方、比較例９の条件で得られたＩＧＺＯ焼結体は、クラックの長さは本発明の要件を満たすものの、抗折強度が４１ＭＰａと低い値となった。これは先述の通り、焼結体内部の残留応力が大きいために強度が低下したと考えられる。

[0048] 上記実施例及び比較例におけるＩＧＺＯ焼結体について、クラック長さと抗折強度との関係を図２～３に示す。また、クラックの長さとバルク抵抗との関係を図４～５に示す。図２～５に示されるように、クラックの長さを適切に制御することで、抗折強度が５０ＭＰａ以上、かつ、バルク抵抗が１００ｍΩｃｍ以下の焼結体を作製することができた。

なお、上記実施例及び比較例におけるＩＧＺＯ焼結体について、クラックの本数を表１に示す。表１に示されるようにクラックの本数が多くても、その長さが制御されていれば、高強度の焼結体が得られることが分かる。

産業上の利用可能性

[0049] 本発明の酸化物焼結体は、高い抗折強度、さらには、低いバルク抵抗を備えたスパッタリングターゲットとすることができ、このターゲットを使用してＤＣスパッタリングする場合はターゲットの割れがなく、パーティクルの発生も少ないので、高品質の薄膜を形成することができる。このようなスパッタリングターゲットを用いることで、酸化物半導体膜等を安定的に量産することができるという優れた効果を有する。本発明の酸化物半導体膜は、特にフラットパネルディスプレイやフレキシブルパネルディスプレイなどのバッ

クプレーンにおけるＴＦＴの活性層として特に有用である。

請求の範囲

[請求項1] インジウム（Ｉｎ）、ガリウム（Ｇａ）、亜鉛（Ｚｎ）、酸素（Ｏ）及び不可避的不純物からなる酸化物焼結体であって、前記焼結体に存在するクラックの平均長さが３μｍ以上、１５μｍ以下であることを特徴とするＩＧＺＯ焼結体。

[請求項2] 前記焼結体に存在するクラックの最大長さが６μｍ以上、４５μｍ以下であることを特徴とする請求項１記載のＩＧＺＯ焼結体。

[請求項3] 抗折強度が５０ＭＰａ以上、かつ、バルク抵抗が１００ｍΩｃｍ以下であることを特徴とする請求項１又は２記載のＩＧＺＯ焼結体。

[請求項4] Ｉｎ、Ｇａ、Ｚｎの原子数比が、以下の式を満たすことを特徴とする請求項１～３のいずれか一項に記載のＩＧＺＯ焼結体。

０．３１４≦Ｉｎ／（Ｉｎ＋Ｇａ＋Ｚｎ）≦０．３４２

０．３１４≦Ｇａ／（Ｉｎ＋Ｇａ＋Ｚｎ）≦０．３４２

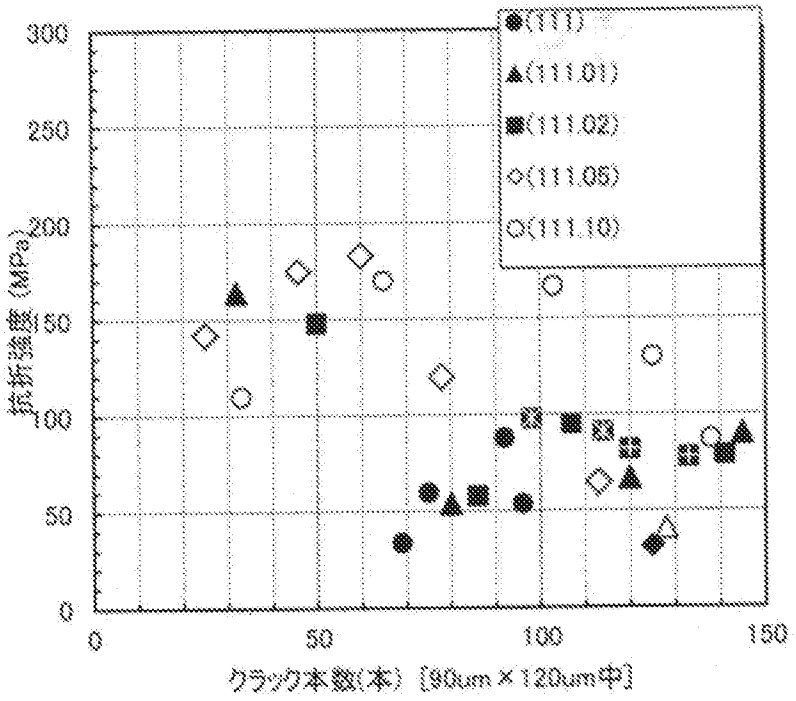
０．３２５≦Ｚｎ／（Ｉｎ＋Ｇａ＋Ｚｎ）≦０．３６４

[請求項5] 平均結晶粒径が２２μｍ以下であることを特徴とする請求項１～４のいずれか一項に記載のＩＧＺＯ焼結体。

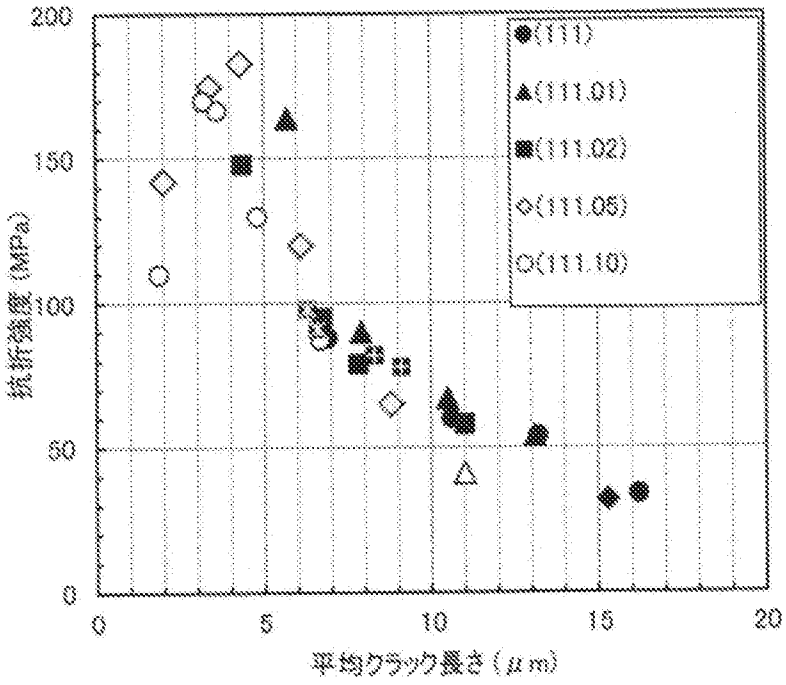
[請求項6] 焼結体密度が６．１０ｇ／ｃｍ^{3}以上であることを特徴とする請求項１～５のいずれか一項に記載のＩＧＺＯ焼結体。

[請求項7] 請求項１～６のいずれか一項に記載のＩＧＺＯ焼結体からなる平板又は円筒形のスパッタリングターゲット。

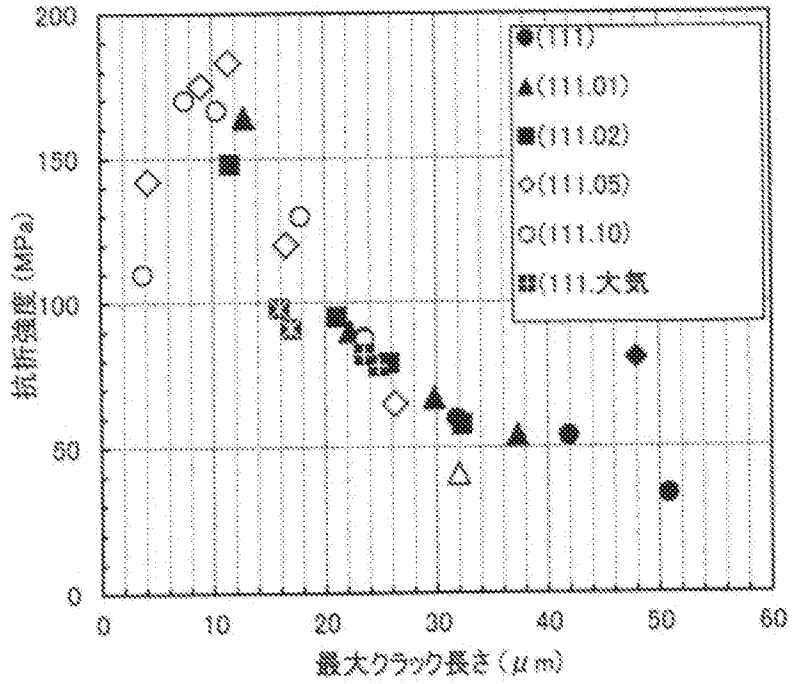
[図1]


●(111)
▲(111.01)
■(111.02)
◇(111.05)
○(111.10)
抗折強度(MPa)
300
250
200
150
100
50
0
0
50
100
150
クラック本数(本)〔90um×120um中〕

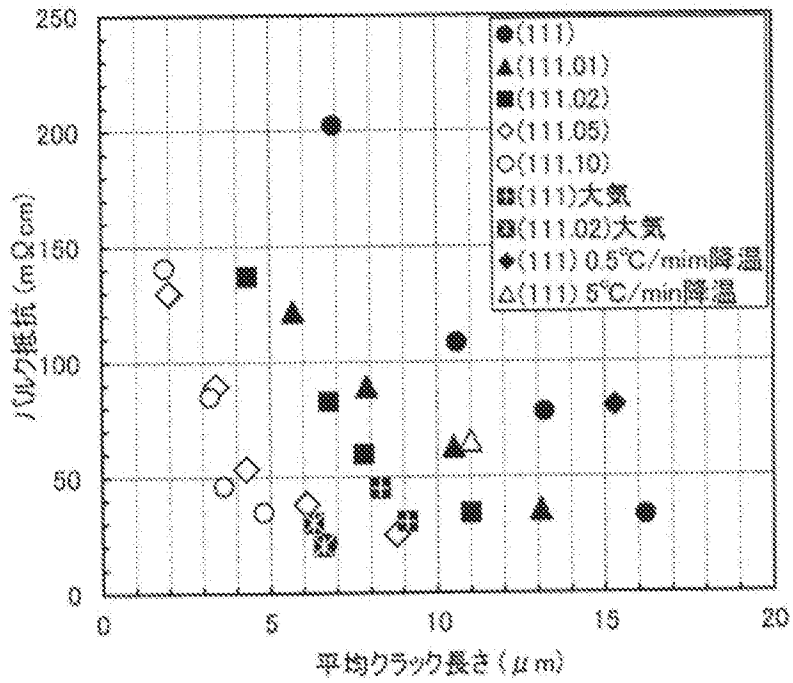
[図2]


●(111)
▲(111.01)
■(111.02)
◇(111.05)
○(111.10)
抗折強度(MPa)
200
150
100
50
0
0
5
10
15
20
平均クラック長さ(μm)

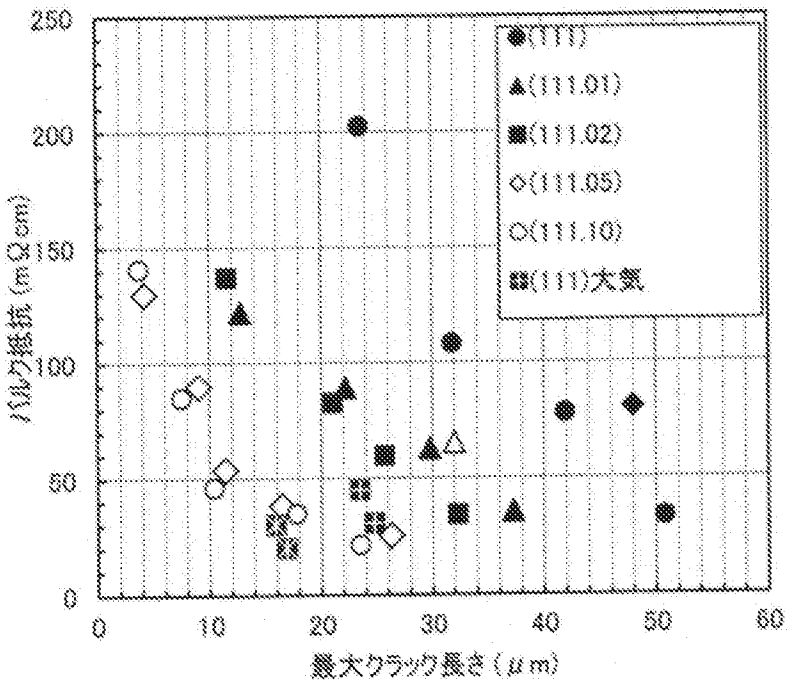
[図3]


200
150
100
50
0
0
10
20
30
40
50
60
抗折強度（MPa）
最大クラック長さ（μm）
●(111)
▲(111.01)
■(111.02)
◇(111.05)
○(111.10)
▣(111.大気

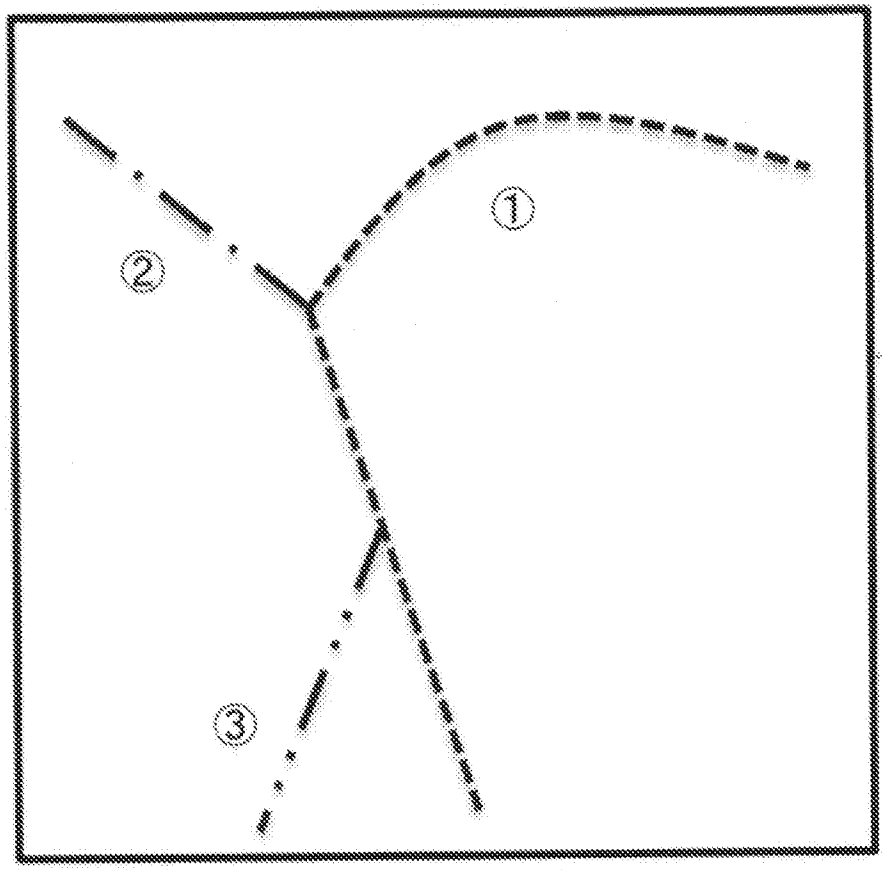
[図4]


250
200
150
100
50
0
0
5
10
15
20
パルク抵抗（mΩcm）
平均クラック長さ（μm）
●(111)
▲(111.01)
■(111.02)
◇(111.05)
○(111.10)
▣(111)大気
▣(111.02)大気
◆(111) 0.5℃/min降温
△(111) 5℃/min降温

[図5]


250
200
150
100
50
0
0
10
20
30
40
50
60
バルク抵抗（mΩcm）
最大クラック長さ（μm）
●(111)
▲(111.01)
■(111.02)
◇(111.05)
○(111.10)
■(111)大気

[図6]


①
②
③

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2016/054839

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
C04B35/00(2006.01)i, *C23C14/34*(2006.01)i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
C04B35/00, C23C14/34

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched
Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2016
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2016 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2016

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 2009/148154 A1 (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 10 December 2009 (10.12.2009), claims 1 to 3, 13 to 17, 22; paragraphs [0011], [0012], [0014], [0022], [0023], [0039], [0051], [0063] to [0065], [0116] to [0119] & JP 2013-147423 A & US 2011/0168994 A1 claims 1 to 3, 13 to 17, 22; paragraphs [0039], [0405] & KR 10-2011-0020901 A & CN 102105619 A & TW 201011115 A	1-7

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed
"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the international search report
09 May 2016 (09.05.16)	17 May 2016 (17.05.16)
Name and mailing address of the ISA/ Japan Patent Office 3-4-3,Kasumigaseki,Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915,Japan	Authorized officer Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2016/054839

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2008-163441 A (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 17 July 2008 (17.07.2008), claims 1, 3 to 5; paragraphs [0008], [0010], [0018] to [0022], [0053], [0054] & US 2010/0108502 A1 claims 1, 8 to 10; paragraphs [0235], [0236] & WO 2008/072486 A1 & EP 2096188 A1 & KR 10-2009-0091755 A & CN 101558184 A & TW 200833852 A	1-3,5-7
A	JP 2003-183820 A (Mitsui Mining & Smelting Co., Ltd.), 03 July 2003 (03.07.2003), full specification & WO 2003/025247 A1 & CN 1492941 A & KR 10-0541329 B1 & TW 200426238 A	1-7
A	JP 2015-24944 A (Tosoh Corp.), 05 February 2015 (05.02.2015), full specification & WO 2014/021334 A1 & TW 201410904 A	1-7

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２０１６／０５４８３９

Ａ．　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　C04B35/00(2006.01)i, C23C14/34(2006.01)i

Ｂ．　調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　C04B35/00, C23C14/34

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	１９２２－１９９６年
日本国公開実用新案公報	１９７１－２０１６年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０１６年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０１６年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

Ｃ．　関連すると認められる文献

引用文献のカテゴリー＊	引用文献名　及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する請求項の番号
X	WO 2009/148154 A1（出光興産株式会社）2009.12.10, 請求項１－３，１３－１７，２２，［００１１］，［００１２］，［００１４］，［００２２］，［００２３］，［００３９］，［００５１］，［００６３］－［００６５］，［０１１６］－［０１１９］ & JP 2013-147423 A & US 2011/0168994 A1, 請求項１－３，１３－１７，２２，［００３９］，［０４０５］ & KR 10-2011-0020901 A & CN 102105619 A & TW 201011115 A	1-7
X	JP 2008-163441 A（出光興産株式会社）2008.07.17, 請求項１，３	1-3,5-7

☑　Ｃ欄の続きにも文献が列挙されている。　　☐　パテントファミリーに関する別紙を参照。

＊　引用文献のカテゴリー
「Ａ」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「Ｅ」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「Ｌ」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）
「Ｏ」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「Ｐ」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献
「Ｔ」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「Ｘ」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Ｙ」特に関連のある文献であって、当該文献と他の１以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「＆」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日	国際調査報告の発送日
０９．０５．２０１６	１７．０５．２０１６

国際調査機関の名称及びあて先
日本国特許庁（ＩＳＡ／ＪＰ）
郵便番号１００－８９１５
東京都千代田区霞が関三丁目４番３号

特許庁審査官（権限のある職員）　４Ｔ　３４４３
末松　佳記
電話番号　０３－３５８１－１１０１　内線　３４６５

Ｃ（続き）．　関連すると認められる文献

引用文献のカテゴリー＊	引用文献名　及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する請求項の番号
	－５，［０００８］，［００１０］，［００１８］－［００２２］，［００５３］，［００５４］ & US 2010/0108502 A1, 請求項１，８－１０，［０２３５］，［０２３６］ & WO 2008/072486 A1 & EP 2096188 A1 & KR 10-2009-0091755 A & CN 101558184 A & TW 200833852 A	
A	JP 2003-183820 A（三井金属鉱業株式会社）2003.07.03, 明細書全文 & WO 2003/025247 A1 & CN 1492941 A & KR 10-0541329 B1 & TW 200426238 A	1-7
A	JP 2015-24944 A（東ソー株式会社）2015.02.05, 明細書全文 & WO 2014/021334 A1 & TW 201410904 A	1-7