(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
2017年12月21日(21.12.2017)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2017/217529 A1

(51) 国際特許分類:
C04B 35/01 (2006.01)　*H01B 5/14* (2006.01)
C23C 14/34 (2006.01)　*H01L 21/363* (2006.01)
H01B 1/08 (2006.01)　*H01B 13/00* (2006.01)

(21) 国際出願番号：　PCT/JP2017/022276

(22) 国際出願日：　2017年6月16日(16.06.2017)

(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 2016-121063　2016年6月17日(17.06.2016)　JP

(71) 出願人：出光興産株式会社(**IDEMITSU KOSAN CO.,LTD.**) [JP/JP]；〒1008321 東京都千代田区丸の内三丁目１番１号 Tokyo (JP).

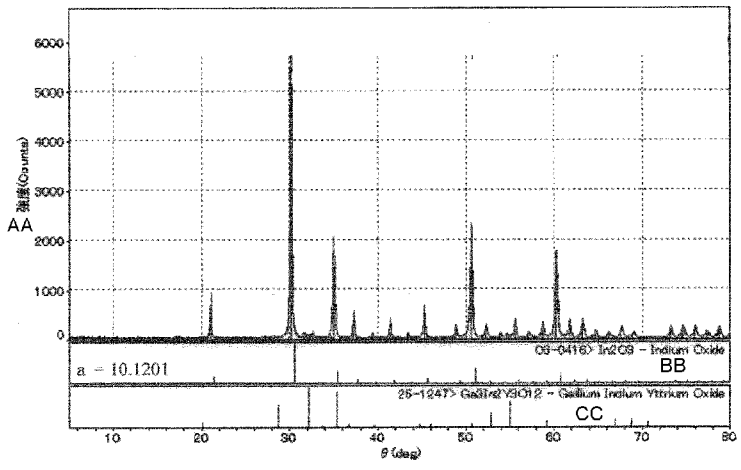
(72) 発明者：井上　一吉 (**INOUE, Kazuyoshi**)；〒2990293 千葉県袖ケ浦市上泉１２８０番地 Chiba (JP). 笘井 重和(**TOMAI, Shigekazu**)；〒2990293 千葉県袖ケ浦市上泉１２８０番地 Chiba (JP). 柴田 雅敏(**SHIBATA, Masatoshi**)；〒2990293 千葉県袖ケ浦市上泉１２８０番地 Chiba (JP). 竹嶋 基浩(**TAKESHIMA, Motohiro**)；〒2990293 千葉県袖ケ浦市上泉１２８０番地 Chiba (JP).

(74) 代理人：特許業務法人平和国際特許事務所 (**HEIWA INTERNATIONAL PATENT OFFICE**)；〒1010041 東京都千代田区神田須田町一丁目２６番地 芝信神田ビル３階 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, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, 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,

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

(54) 発明の名称： 酸化物焼結体及びスパッタリングターゲット



AA Intensity (Counts)
BB Indium Oxide
CC Gallium Indium Yttrium Oxide

(57) **Abstract:** The oxide sintered body includes a bixbyite phase represented by In_2O_3 and a garnet phase represented by $Y_3In_2Ga_3O_{12}$.

(57) 要約：In_2O_3で表されるビックスバイト相、及び$Y_3In_2Ga_3O_{12}$で表されるガーネット相を含む酸化物焼結体。

［続葉有］

WO 2017/217529 A1

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).

添付公開書類:

一 国際調査報告(条約第21条(3))

明　細　書

発明の名称 ： 酸化物焼結体及びスパッタリングターゲット

技術分野

[0001] 本発明は、酸化物焼結体及びスパッタリングターゲットに関する。

背景技術

[0002] 薄膜トランジスタ（ＴＦＴ）に用いられるアモルファス（非晶質）酸化物半導体は、汎用のアモルファスシリコン（ａ－Ｓｉ）に比べて高いキャリア移動度を有し、光学バンドギャップが大きく、低温で成膜できるため、大型・高解像度・高速駆動が要求される次世代ディスプレイや、耐熱性の低い樹脂基板等への適用が期待されている。

[0003] 上記酸化物半導体（膜）の形成に当たっては、スパッタリングターゲットをスパッタリングするスパッタリング法が好適に用いられている。これは、スパッタリング法で形成された薄膜が、イオンプレーティング法や真空蒸着法、電子ビーム蒸着法で形成された薄膜に比べ、膜面方向（膜面内）における成分組成や膜厚等の面内均一性に優れており、スパッタリングターゲットと同じ成分組成の薄膜を形成できるためである。

[0004] 特許文献１には、Ｉｎ，Ｙ及びＯからなり、Ｙ／（Ｙ＋Ｉｎ）が、原子濃度で２．０～４０原子％、体積抵抗率が５×１０$^{-2}$Ωｃｍ以下である酸化物焼結体をスパッタリングターゲットとして用いることが記載されている。また、Ｓｎ元素の含有量は、Ｓｎ／（Ｉｎ＋Ｓｎ＋他の全金属原子）が、原子濃度で２．８～２０原子％であることが記載されている。

[0005] 特許文献２には、Ｉｎ，Ｓｎ，Ｙ及びＯからなり、Ｙ／（Ｉｎ＋Ｓｎ＋Ｙ）が、原子濃度で０．１～２．０原子％である酸化物焼結体、これを用いたスパッタリングターゲットが記載されている。

[0006] 特許文献３には、ＹＩｎＯ$_3$とＩｎ$_2$Ｏ$_3$の格子定数の中間の格子定数を有する焼結体、及びこれをスパッタリングターゲットとして用いることが記載されている。

[0007] 特許文献４には、酸化インジウム、酸化イットリウム、及び酸化アルミニウム又は酸化ガリウムを含む原料を焼結して得られる、$A_3B_5O_{12}$型ガーネット構造の化合物を含有するスパッタリングターゲットが記載されている。

先行技術文献

特許文献

[0008] 特許文献1：特開平０９－２０９１３４号公報

特許文献2：特開２０００－１６９２１９号公報

特許文献3：国際公開２０１０－０３２４３２号

特許文献4：国際公開２０１５－０９８０６０号

発明の概要

[0009] 本発明の目的は、新規な酸化物焼結体及びスパッタリングターゲットを提供することである。

[0010] 従来、特許文献４に記載されるように、酸化イットリウムと酸化ガリウムからなる化合物は、$A_3B_5O_{12}$型のガーネット相を含むと考えられていた。しかしながら、本発明者らが鋭意研究の結果、$A_3B_5O_{12}$型のガーネット相ではなく、In_2O_3で表されるビックスバイト相を主成分とする酸化物焼結体において、$Y_3In_2Ga_3O_{12}$で表されるガーネット相が出現することを見出し、本発明を完成させた。

[0011] 本発明によれば、以下の酸化物焼結体及びスパッタリングターゲット等が提供される。

１．In_2O_3で表されるビックスバイト相、及び

$Y_3In_2Ga_3O_{12}$で表されるガーネット相を含む酸化物焼結体。

２．Ｉｎ、Ｇａ及びＹの原子比が、下記の範囲である１に記載の酸化物焼結体。

Ｉｎ／（Ｉｎ＋Ｙ＋Ｇａ）が０．６０以上０．９７以下

Ｇａ／（Ｉｎ＋Ｙ＋Ｇａ）が０．０１以上０．２０以下

Ｙ／（Ｉｎ＋Ｙ＋Ｇａ）が０．０２以上０．２０以下

３．前記In_2O_3で表されるビックスバイト相の最大ピーク強度の、前記Y_3

$In_2Ga_3O_{12}$で表されるガーネット相の最大ピーク強度に対する、ピーク強度比が、１～５００である１又は２に記載の酸化物焼結体。

４．さらに、正四価の金属元素を含む１～３のいずれかに記載の酸化物焼結体。

５．前記正四価の金属元素が、前記In_2O_3で表されるビックスバイト相又は$Y_3In_2Ga_3O_{12}$で表されるガーネット相に固溶している４に記載の酸化物焼結体。

６．前記正四価の金属元素の含有量が、酸化物焼結体中の全金属元素に対して、原子濃度で１００～１００００ｐｐｍである、４又は５に記載の酸化物焼結体。

７．前記正四価の金属元素がＳｎである４～６のいずれかに記載の酸化物焼結体。

８．相対密度が９５％以上である１～７のいずれかに記載の酸化物焼結体。

９．バルク抵抗が、３０ｍΩ・ｃｍ以下である１～８のいずれかに記載の酸化物焼結体。

１０．１～９のいずれかに記載の酸化物焼結体を含むスパッタリングターゲット。

１１．１０に記載のスパッタリングターゲットを用いる酸化物半導体薄膜の製造方法。

１２．１１に記載の酸化物半導体薄膜を含む薄膜トランジスタの製造方法。

[0012] 本発明によれば、新規な酸化物焼結体及びスパッタリングターゲットを提供できる。

図面の簡単な説明

[0013] [図1]実施例１の酸化物焼結体のＸ線回折パターンである。

[図2]実施例１２の酸化物焼結体のＸ線回折パターンである。

[図3]本発明のＴＦＴの一実施形態を示す図である。

[図4]本発明のＴＦＴの一実施形態を示す図である。

発明を実施するための形態

[0014] 本発明の酸化物焼結体は、In_2O_3で表されるビックスバイト相、及び$Y_3In_2Ga_3O_{12}$で表されるガーネット相を含む。

[0015] これにより、焼結体密度（相対密度）の向上及び体積抵抗率（バルク抵抗）の低減を実現することができる。また、線膨張係数を小さく、熱伝導率を大きくすることができる。また、雰囲気焼成炉を用いて酸素雰囲気下という特殊な条件下や、大気下等で行うような簡便な方法で焼成した場合でも、体積抵抗率も低く焼結体密度も高い焼結体とすることができる。

本発明の焼結体（酸化物焼結体）により、強度が高いスパッタリングターゲット（ターゲット）を得ることができ、熱応力によりマイクロクラックを発生せず、チッピングや異常放電をおこさず、大パワーでのスパッタリングが可能なスパッタリングターゲットを得ることができる。

本発明の焼結体は、ターゲットの強度が高い。また熱伝導率が高く、線膨張係数が小さいため、熱応力を抑えることができ、その結果、ターゲットのマイクロクラックやチッピングの発生を抑制し、ノジュールや異常放電の発生を抑制することができる。

加えて、本発明の焼結体により、高移動度で、ＴＦＴ製造プロセス過程で酸化物半導体層の積層後に行われる化学気相成長プロセス（ＣＶＤプロセス）やＴＦＴ作製後の加熱処理等での熱による特性への劣化が少なく、高性能のＴＦＴを得ることができる。

[0016] In_2O_3で表されるビックスバイト相及び$Y_3In_2Ga_3O_{12}$で表されるガーネット相は、例えばＸ線回折（ＸＲＤ）法により、ＸＲＤチャートから検出することができる。

[0017] 本発明の焼結体は、In_2O_3で表されるビックスバイト相が主成分であることが好ましい。

[0018] In_2O_3で表されるビックスバイト相の最大ピーク強度の、$Y_3In_2Ga_3O_{12}$で表されるガーネット相の最大ピーク強度に対する、ピーク強度比（In_2O_3／$Y_3In_2Ga_3O_{12}$）は、１～５００が好ましく、より好ましくは５～３００であり、さらに好ましくは７～２９０である。

上記範囲内であることにより、安定したスパッタを行うことができる。

[0019] In_2O_3で表されるビックスバイト相の最大ピーク強度の、$Y_3In_2Ga_3O_{12}$で表されるガーネット相の最大ピーク強度に対する、ピーク強度比（In_2O_3／$Y_3In_2Ga_3O_{12}$）は、例えばＸＲＤ測定から算出することができる。

具体的には、In_2O_3で表されるビックスバイト相の最大ピークが現れるピーク強度(２θ/θ＝３０～３１°付近、例えば、２９．５～３１°)と、$Y_3In_2Ga_3O_{12}$で表されるガーネット相の最大ピークが現れるピーク強度（２θ/θ＝３２°付近、例えば、３１．１～３２．５°）とを用いて、In_2O_3で表されるビックスバイト相の最大ピークが現れるピーク強度を、$Y_3In_2Ga_3O_{12}$で表されるガーネット相の最大ピークが現れるピーク強度で除することで求めることができる。

[0020] In_2O_3で表されるビックスバイト相に、Ｙ、Ｇａ、又はＹ及びＧａが固溶していてもよい。In_2O_3で表されるビックスバイト相に、Ｙ及びＧａが固溶していることが好ましい。固溶は、置換型固溶が好ましい。

これにより、安定したスパッタを行うことができる。

[0021] Ｙ、Ｇａ、又はＹ及びＧａの固溶は、例えばＸＲＤ測定を用いて、ビックスバイト相の格子定数から同定することができる。

In_2O_3で表されるビックスバイト相の格子定数が、例えば、In_2O_3で表されるビックスバイト相のみの格子定数よりも小さくなっていれば、Ｇａの固溶が優位的に作用しており、In_2O_3で表されるビックスバイト相のみの格子定数よりも大きくなっていれば、Ｙの固溶が優位的に作用している。

[0022] ここで、「格子定数」とは、単位格子の格子軸の長さと定義され、例えばＸ線回折法によって求めることができる。

[0023] また、$Y_3In_2Ga_3O_{12}$で表されるガーネット相を構成する各サイトに、Ｙ、Ｉｎ、Ｇａ、又はＹ、Ｉｎ及びＧａが固溶していてもよい。

これら金属元素が固溶していることは、酸化物焼結体に含まれるガーネット相が、$Y_3In_2Ga_3O_{12}$で表される組成から少し外れて現れることにより

確認できる。具体的には、リードベルト解析で確認することができる。

これにより、安定したスパッタを行うことができる。

[0024] $Y_3In_2Ga_3O_{12}$で表されるガーネット相の平均粒径は、１５μｍ以下が好ましく、より好ましくは１０μｍ以下であり、さらに好ましくは８μｍ以下であり、特に好ましくは５μｍ以下である。下限値に特に制限はないが、通常０．１μｍ以上である。

$Y_3In_2Ga_3O_{12}$で表されるガーネット相の平均粒径が１５μｍ以下の場合、放電を安定化しやすくなる。

$Y_3In_2Ga_3O_{12}$で表されるガーネット相の平均粒径は、例えば、電子プローブ微小分析器（ＥＰＭＡ）により、$Y_3In_2Ga_3O_{12}$で表されるガーネット相を特定し、その最大径を直径とする円を仮定し、その直径の平均値として、求めることができる。

[0025] 酸化物焼結体に含まれるＩｎ元素、Ｙ元素及びＧａ元素に対するＩｎ元素の原子比Ｉｎ／（Ｉｎ＋Ｙ＋Ｇａ）は、０．６０以上０．９７以下であることが好ましく、０．７０以上０．９６以下がより好ましく、０．７５以上０．９５以下がさらに好ましい。

Ｉｎ／（Ｉｎ＋Ｙ＋Ｇａ）が０．６０未満の場合、形成する酸化物半導体薄膜を含むＴＦＴの移動動が小さくなるおそれがある。Ｉｎ／（Ｉｎ＋Ｙ＋Ｇａ）が０．９７超の場合、ＴＦＴの安定性が得られないおそれや、導電化して半導体になりにくいおそれがある。

[0026] 酸化物焼結体に含まれるＩｎ元素、Ｙ元素及びＧａ元素に対するＧａ元素の原子比Ｇａ／（Ｉｎ＋Ｙ＋Ｇａ）は、０．０１以上０．２０以下であることが好ましく、０．０２以上０．１５以下がより好ましく、０．０２以上０．１２以下がさらに好ましい。

Ｇａ／（Ｉｎ＋Ｙ＋Ｇａ）が０．０１未満の場合、$Y_3In_2Ga_3O_{12}$で表されるガーネット相が形成されず、焼結体のバルク抵抗が高くなったり、焼結体密度及び焼結体強度が低く、そのためスパッタ時の熱による割れ等が発生しやすくなったり、安定したスパッタリングができなくなるおそれがある

。一方、Ｇａ／（Ｉｎ＋Ｙ＋Ｇａ）が０．２０超の場合、形成する酸化物半導体薄膜を含むＴＦＴの移動動が小さくなるおそれがある。

[0027] 酸化物焼結体に含まれるＩｎ元素、Ｙ元素及びＧａ元素に対するＹ元素の原子比Ｙ／（Ｉｎ＋Ｙ＋Ｇａ）は、０．０２以上０．２０以下であることが好ましく、０．０２以上０．１８以下がより好ましく、０．０３以上０．１６以下がさらに好ましい。

Ｙ／（Ｉｎ＋Ｙ＋Ｇａ）が０．０２未満の場合、$Y_3In_2Ga_3O_{12}$で表されるガーネット相が形成されず、焼結体のバルク抵抗が高くなったり、焼結体密度及び焼結体強度が低く、そのためスパッタ時の熱による割れ等が発生しやすくなったり、安定したスパッタリングができなくなるおそれがある。一方、Ｙ／（Ｉｎ＋Ｙ＋Ｇａ）が０．２０超の場合、形成する酸化物半導体薄膜を含むＴＦＴの移動動が小さくなるおそれがある。

[0028] 本発明の酸化物焼結体は、さらに、正四価の金属元素を含むことが好ましい。

これにより、より安定的にスパッタリングを行うことができる。

[0029] 正四価の金属元素としては、Ｓｎ、Ｔｉ、Ｚｒ、Ｈｆ、Ｃｅ、Ｇｅ等が挙げられる。

上記正四価の金属元素のうちＳｎが好ましい。Ｓｎのドーピング効果によりバルク抵抗が低下し、より安定的にスパッタリングを行うことができる。

[0030] 正四価の金属元素は、In_2O_3で表されるビックスバイト相又は$Y_3In_2Ga_3O_{12}$で表されるガーネット相に固溶していることが好ましく、In_2O_3で表されるビックスバイト相に固溶していることがより好ましい。固溶は、置換型固溶が好ましい。

これにより、より安定的にスパッタリングを行うことができる。

[0031] 正四価の金属元素の固溶については、例えば、酸化物焼結体のバルク抵抗からから同定することができる。正四価の金属元素を加えない場合や固溶していない時の酸化物焼結体のバルク抵抗は高く、異常放電の原因となる場合もある。正四価の金属元素を添加し、固溶した場合は、酸化物焼結体のバル

ク抵抗が低下し、安定したスパッタリング状態が得られるようになる。

[0032] 正四価の金属元素の含有量は、酸化物焼結体中の全金属元素に対して、原子濃度で１００～１００００ｐｐｍが好ましく、より好ましくは５００ｐｐｍ以上８０００ｐｐｍ以下であり、さらに好ましくは８００ｐｐｍ以上６０００ｐｐｍ以下である。

正四価の金属元素の含有量が１００ｐｐｍ未満の場合、バルク抵抗が低下しないおそれがある。一方、正四価の金属元素の含有量が１００００ｐｐｍ超の場合、形成する酸化物半導体薄膜が高キャリア状態になりＴＦＴが導通するおそれや、オン／オフ値が小さくなるおそれがある。

[0033] 本発明の酸化物焼結体は、相対密度が９５％以上であることが好ましく、より好ましくは９６％以上であり、さらに好ましくは９７％以上であり、特に好ましくは９８％以上である。上限値は、特に制限はないが、通常１００％である。

酸化物焼結体の相対密度が９５％以上の場合、ターゲットとして用いた際に、異常放電の原因やノジュール発生の起点となる空隙を減少させることができる。

相対密度は、例えば、アルキメデス法で測定した酸化物焼結体の実測密度を、酸化物焼結体の理論密度で除した値を、百分率にして、算出することができる。

例えば、酸化物焼結体の原料粉末として酸化物Ａ、酸化物Ｂ、酸化物Ｃ、酸化物Ｄを用いた場合において、酸化物Ａ、酸化物Ｂ、酸化物Ｃ、酸化物Ｄの使用量（仕込量）をそれぞれａ（ｇ）、ｂ（ｇ）、ｃ（ｇ）、ｄ（ｇ）とすると、理論密度は、以下のように当てはめることで算出できる。

理論密度＝（ａ＋ｂ＋ｃ＋ｄ）／（（ａ／酸化物Ａの密度）＋（ｂ／酸化物Ｂの密度）＋（ｃ／酸化物Ｃの密度）＋（ｄ／酸化物Ｄの密度））

尚、各酸化物の密度は、密度と比重はほぼ同等であることから、化学便覧基礎編Ｉ日本化学編　改定２版（丸善株式会社）に記載されている酸化物の比重の値を用いるとよい。なお、理論密度は、各酸化物の重量比を用いて

以下のように算出することもできる。

理論密度＝１／（（酸化物Ａの重量比／酸化物Ａの密度）＋（酸化物Ｂの重量比／酸化物Ｂの密度）＋（酸化物Ｃの重量比／酸化物Ｃの密度）＋（酸化物Ｄの重量比／酸化物Ｄの密度））

[0034] 本発明の酸化物焼結体は、バルク抵抗が、好ましくは３０ｍΩ・ｃｍ以下であり、より好ましくは１５ｍΩ・ｃｍ以下であり、さらに好ましくは１０ｍΩ・ｃｍ以下である。下限値は、特に制限はないが、通常１ｍΩ・ｃｍ以上である。

酸化物焼結体のバルク抵抗が３０ｍΩ・ｃｍ以下の場合、大パワーでの成膜時に、ターゲットの帯電による異常放電が発生しにくく、また、プラズマ状態が安定し、スパークが発生しにくくなる。また、パルスＤＣスパッタ装置を用いる場合、さらにプラズマが安定し、異常放電等の問題もなく、安定してスパッタできるようになる。

バルク抵抗は、例えば、四探針法に基づき測定することができる。

[0035] 本発明の酸化物焼結体は、３点曲げ強度が、１２０ＭＰａ以上であることが好ましく、１４０ＭＰａ以上がより好ましく、１５０ＭＰａ以上がさらに好ましい。

酸化物焼結体の３点曲げ強度が１２０ＭＰａ未満の場合、大パワーでスパッタ成膜した際に、ターゲットの強度が弱く、ターゲットが割れたり、チッピングを起こして、チッピングした破片がターゲット上に飛散し、異常放電の原因となるおそれがある。

[0036] ３点曲げ強度は、例えばＪＩＳ　Ｒ　１６０１「ファインセラミックスの室温曲げ強さ試験」に準じて、試験することができる。

具体的には、幅４ｍｍ、厚さ３ｍｍ、長さ４０ｍｍの標準試験片を用いて、一定距離（３０ｍｍ）に配置された２支点上に試験片を置き、支点間の中央からクロスヘッド速度０．５ｍｍ／分荷重を加え、破壊した時の最大荷重より、曲げ強さを算出することができる。

[0037] 本発明の酸化物焼結体は、線膨張係数が９．０×１０$^{-6}$Ｋ$^{-1}$以下であるこ

とが好ましく、８．５×１０$^{-6}$Ｋ$^{-1}$以下がより好ましく、８．０×１０$^{-6}$Ｋ$^{-1}$以下がさらに好ましい。下限値は、特に制限はないが、通常５．０×１０$^{-6}$Ｋ$^{-1}$以上である。

酸化物焼結体の線膨張係数が９．０×１０$^{-6}$Ｋ$^{-1}$を超える場合、大パワーでスパッタリング中に加熱され、ターゲットが膨張し、ボンディングされている銅版側との間で変形が起こり、応力によりターゲットにマイクロクラックが入ったり、割れやチッピングにより、異常放電の原因となるおそれがある。

線膨張係数は、例えば幅５ｍｍ、厚さ５ｍｍ、長さ１０ｍｍの標準試験片を用いて、昇温速度を５℃／分にセットし、３００℃に到達した時の熱膨張による変位を、位置検出機で検出することにより求めることができる。

[0038] 本発明の酸化物焼結体は、熱伝導率が５．０Ｗ／ｍ・Ｋ以上であることが好ましく、５．５Ｗ／ｍ・Ｋ以上がより好ましく、６．０Ｗ／ｍ・Ｋ以上がさらに好ましく、６．５Ｗ／ｍ・Ｋ以上が最も好ましい。

上限値は、特に制限はないが、通常１０Ｗ／ｍ・Ｋ以下である。

酸化物焼結体の熱伝導率が５．０Ｗ／ｍ・Ｋ未満の場合、大パワーでスパッタリング成膜した際に、スパッタ面とボンディングされた面の温度が異なり、内部応力によりターゲットにマイクロクラックや割れ、チッピングが発生するおそれがある。

熱伝導率は、例えば直径１０ｍｍ、厚さ１ｍｍの標準試験片を用いて、レーザーフラッシュ法により比熱容量と熱拡散率を求め、これに試験片の密度を乗算することにより算出できる。

[0039] 本発明の酸化物焼結体は、ヤング率が２００ＧＰａ以下であることが好ましく、１９０ＧＰａ以下がより好ましく、１８５ＧＰａ以下がさらに好ましく、１８０ＧＰａ以下が最も好ましい。

ヤング率の下限値は、特に制限はないが、通常１００ＧＰａ以上である。

酸化物焼結体のヤング率が２００ＧＰａ以下であれば、スパッタリング中に発生する熱応力でも割れなくなり好ましい。

ヤング率は、例えば超音波パルス反射法による音速測定より求めることができる。

[0040] 本発明の酸化物焼結体は、本質的に、Ｉｎ、Ｙ、Ｇａ、及び任意に正四価の金属元素からなっており、本発明の効果を損なわない範囲で他に不可避不純物を含んでもよい。

本発明の酸化物焼結体の金属元素の、例えば、９０原子％以上、９５原子％以上、９８原子％以上、９９原子％以上又は１００原子％が、Ｉｎ、Ｙ及びＧａ、又はＩｎ、Ｙ、Ｇａ及び正四価の金属元素からなっていてもよい。

[0041] 本発明の酸化物焼結体は、結晶相としてIn_2O_3で表されるビックスバイト相、及び$Y_3In_2Ga_3O_{12}$で表されるガーネット相を含めばよく、これら結晶相のみからなってもよい。

[0042] 本発明の酸化物焼結体は、Ｉｎ元素を含む原料粉末、Ｙ元素を含む原料粉末、及びＧａ元素を含む原料粉末の混合粉末を調製する工程、混合粉末を成形して成形体を製造する工程、及び成形体を焼成する工程により、製造できる。

混合粉末は、正四価の金属元素を含む原料粉末を含んでもよい。

原料粉末は、酸化物粉末が好ましい。即ち、Ｉｎ元素を含む原料粉末は、酸化インジウム粉末が好ましく、Ｙ元素を含む原料粉末は、酸化イットリウム粉末が好ましく、Ｇａ元素を含む原料粉末は、酸化ガリウム粉末が好ましい。正四価の金属元素を含む原料粉末は、正四価の金属元素の酸化物粉末が好ましく、なかでも酸化スズ粉末が好ましい。

[0043] 原料粉末の混合比は、例えば得ようとする焼結体の原子比に対応させる。

[0044] 原料粉末の平均粒径は、好ましくは０．１～１．２μｍであり、より好ましくは０．５～１．０μｍ以下である。原料粉末の平均粒径はレーザー回折式粒度分布装置等で測定することができる。

[0045] 原料の混合、成形方法は特に限定されず、公知の方法を用いて行うことができる。また、混合する際にはバインダーを添加してもよい。

原料の混合は、例えば、ボールミル、ビーズミル、ジェットミル又は超音

波装置等の公知の装置を用いて行うことができる。粉砕時間は、適宜調整すればよいが、６～１００時間程度が好ましい。

[0046] 成形方法は、例えば、混合粉末を加圧成形して成形体とすることができる。この工程により、製品の形状（例えば、スパッタリングターゲットとして好適な形状）に成形することができる。

[0047] 原料を成形型に充填し、通常、金型プレス又は冷間静水圧プレス（ＣＩＰ）により、例えば１０００ｋｇ／ｃｍ^{2}以上の圧力で成形を施して、成形体を得ることができる。

尚、成形処理に際しては、ポリビニルアルコールやポリエチレングリコール、メチルセルロース、ポリワックス、オレイン酸、ステアリン酸等の成形助剤を用いてもよい。

[0048] 得られた成形体を、例えば１２００～１６５０℃の焼結温度で１０時間以上焼結して焼結体を得ることができる。

焼結温度は、好ましくは１３５０～１６００℃、より好ましくは１４００～１６００℃、さらに好ましくは１４５０～１６００℃である。焼結時間は好ましくは１０～５０時間、より好ましくは１２～４０時間、さらに好ましくは１３～３０時間である。

[0049] 焼結温度が１２００℃未満又は焼結時間が１０時間未満であると、焼結が十分進行しないため、ターゲットの電気抵抗が十分下がらず、異常放電の原因となるおそれがある。一方、焼結温度が１６５０℃を超えるか、又は、焼結時間が５０時間を超えると、著しい結晶粒成長により平均結晶粒径の増大や、粗大空孔の発生を来たし、焼結体強度の低下や異常放電の原因となるおそれがある。

[0050] 常圧焼結法では、通常、成形体を大気雰囲気、又は酸素ガス雰囲気にて焼結する。酸素ガス雰囲気は、酸素濃度が、例えば１０～５０体積％の雰囲気であることが好ましい。昇温過程を大気雰囲気下で行ったとしても、焼結体密度を高くすることができる。

[0051] さらに、焼結に際しての昇温速度は、８００℃から焼結温度（１２００～

１６５０℃）までを５０～１５０℃／時間とすることが好ましい。

本発明の酸化物焼結体において８００℃から上の温度範囲は、焼結が最も進行する範囲である。この温度範囲での昇温速度が５０℃／時間より遅くなると、結晶粒成長が著しくなって、高密度化を達成することができないおそれがある。一方、昇温速度が１５０℃／時間より速くなると、成形体に温度分布が生じ、焼結体が反ったり割れたりするおそれがある。

８００℃から焼結温度における昇温速度は、好ましくは６０～１４０℃／時間、より好ましくは７０～１３０℃／時間である。

[0052] 本発明のスパッタリングターゲットは、上述の酸化物焼結体を用いて作製することができる。これにより、酸化物半導体薄膜を、スパッタリング法等の真空プロセスで製造することができる。

[0053] 例えば、焼結体を、切削又は研磨加工し、バッキングプレートにボンディングすることにより、スパッタリングターゲットを作製することができる。

例えば、切断加工することで、焼結体表面の、高酸化状態の焼結部や、凸凹した面を除くことができる。また、指定の大きさにすることができる。

表面を＃２００番、もしくは＃４００番、さらには＃８００番の研磨を行ってもよい。これにより、スパッタリング中の異常放電やパーティクルの発生を抑えることができる。

ボンディングの方法としては、例えば金属インジウムにより接合することが挙げられる。

[0054] 本発明のスパッタリングターゲットは、直流（ＤＣ）スパッタリング法、高周波（ＲＦ）スパッタリング法、交流（ＡＣ）スパッタリング法、パルスＤＣスパッタリング法等に適用することができる。

[0055] 上記スパッタリングターゲットを用いて製膜することにより、酸化物半導体薄膜を得ることができる。これにより、ＴＦＴに用いたときに優れたＴＦＴ性能が発揮される薄膜を形成できる。

[0056] 製膜は、蒸着法、スパッタリング法、イオンプレーティング法、パルスレーザー蒸着法等により行うことができる。

[0057] 本発明のＴＦＴは、上述の酸化物半導体薄膜を含む。酸化物半導体薄膜は、例えばチャネル層として好適に使用できる。

ＴＦＴの素子構成は特に限定されず、公知の各種の素子構成を採用することができる。本発明ＴＦＴは、例えば液晶ディスプレイや有機エレクトロルミネッセンスディスプレイ等の表示装置等に用いることができる。

[0058] 図３に本発明のＴＦＴの一例を示す。このＴＦＴでは、シリコンウエハー（ゲート電極）２０上にあるゲート絶縁膜３０に、本発明のスパッタリングターゲットを用いて得られる半導体膜４０を形成し、層間絶縁膜７０，７０ａが形成されている。半導体膜４０上の７０ａはチャネル層保護層としても作用するものである。半導体膜上にソース電極５０とドレイン電極６０が設けられている。

[0059] 図４に本発明のＴＦＴの一例を示す。このＴＦＴでは、シリコンウエハー（ゲート電極）２０上にあるゲート絶縁膜（例えばSiO_2）３０に、本発明のスパッタリングターゲットを用いて得られる半導体膜４０を形成し、半導体膜４０上にソース電極５０とドレイン電極６０を設け、半導体膜４０、ソース電極５０及びドレイン電極６０上に保護層７０ｂ（例えばＣＶＤ成膜したSiO_2膜）が設けられている。

シリコンウエハー２０及びゲート絶縁膜３０は、熱酸化膜付きシリコンウエハーを用いて、シリコンウエハーをゲート電極とし、熱酸化膜（SiO_2）をゲート絶縁膜としてもよい。

[0060] また、図３及び図４において、ガラス等の基板上にゲート電極２０を形成してもよい。

[0061] 半導体膜は、バンドギャップが３．０ｅＶ以上であることが好ましい。バンドギャップが３．０ｅＶ以上の場合、波長が４２０ｎｍ付近から長波長側の光を吸収しなくなる。これにより、有機ＥＬやＴＦＴ－ＬＣＤの光源からの光を光吸収することがなく、ＴＦＴのチャネル層として用いた際に、ＴＦＴの光による誤作動等がなく、光安定性を向上させることができる。好ましくは３．１ｅＶ以上、より好ましくは３．３ｅＶ以上である。

[0062] 本発明のＴＦＴにおいて、ドレイン電極、ソース電極及びゲート電極の各電極を形成する材料に特に制限はなく、一般に用いられている材料を任意に選択することができる。例えば、酸化インジウムスズ（ＩＴＯ）、酸化インジウム亜鉛（ＩＺＯ）、ＺｎＯ、SnO_2等の透明電極や、Ａｌ、Ａｇ、Ｃｕ、Ｃｒ、Ｎｉ、Ｍｏ、Ａｕ、Ｔｉ、Ｔａ等の金属電極、又はこれらを含む合金の金属電極や積層電極を用いることができる。また、シリコンウエハーを基板として用いてもよく、その場合はシリコンウエハーが電極としても作用する。

[0063] 本発明のＴＦＴにおいて、バックチャネルエッチ型(ボトムゲート型)のＴＦＴの場合、ドレイン電極、ソース電極及びチャネル層上に保護膜を設けることが好ましい。保護膜を設けることにより、ＴＦＴの長時間駆動した場合でも耐久性が向上しやすくなる。尚、トップゲート型のＴＦＴの場合、例えばチャネル層上にゲート絶縁膜を形成した構造となる。

保護膜又は絶縁膜は、例えばＣＶＤにより形成することができるが、その際に高温度によるプロセスになる場合がある。また、保護膜又は絶縁膜は、成膜直後は不純物ガスを含有していることが多く、加熱処理（アニール処理）を行うことが好ましい。加熱処理によりそれらの不純物ガスを取り除くことにより安定した保護膜又は絶縁膜となり、耐久性の高いＴＦＴ素子を形成しやすくなる。

本発明の酸化物半導体薄膜を用いることにより、ＣＶＤプロセスにおける温度の影響、及びその後の加熱処理による影響を受けにくくなるため、保護膜又は絶縁膜を形成した場合であっても、ＴＦＴ特性の安定性を向上させることができる。

実施例

[0064] 以下、本発明を、実施例を用いて説明する。しかしながら、本発明はこれら実施例に限定されない。

[0065] 実施例１～１４

（酸化物焼結体の製造）

酸化インジウム粉末、酸化ガリウム粉末、酸化イットリウム粉末及び酸化スズ粉末を、表１及び２に示す酸化物焼結体の原子比及びＳｎ原子濃度となるように、秤量し、ポリエチレン製のポットに入れて、乾式ボールミルにより７２時間混合粉砕し、混合粉末を作製した。

この混合粉末を金型に入れ、５００ｋｇ／ｃｍ^{2}の圧力でプレス成型体とした。この成型体を２０００ｋｇ／ｃｍ^{2}の圧力でＣＩＰにより緻密化を行った。次に、この成型体を常圧焼成炉に設置して、大気雰囲気下で、３５０℃で３時間保持した後に、１００℃／時間にて昇温し、１４５０℃にて２０時間焼結し、その後、放置して冷却し、酸化物焼結体（焼結体）を得た。

[0066] （ＸＲＤの測定）

得られた焼結体について、Ｘ線回折測定装置Ｓｍａｒｔｌａｂにより、以下の条件で、焼結体のＸ線回折（ＸＲＤ）を測定した。得られたＸＲＤチャートをＪＡＤＥ６により分析し、焼結体中の結晶相を求めた。結果を表１及び２に示す。表１及び２中、「In_2O_3」は「In_2O_3で表されるビックスバイト相」を示し、「$Y_3In_2Ga_3O_{12}$」は「$Y_3In_2Ga_3O_{12}$で表されるガーネット相」を示す。

[0067] ・装置：Ｓｍａｒｔｌａｂ（株式会社リガク製）

・Ｘ線：Ｃｕ－Ｋα線（波長１．５４１８Å、グラファイトモノクロメータにて単色化）

・２θ－θ反射法、連続スキャン（２．０°／分）

・サンプリング間隔：０．０２°

・スリットＤＳ（発散スリット）、ＳＳ（散乱スリット）、ＲＳ（受光スリット）：１．０ｍｍ

[0068] 実施例１について、得られた焼結体のＸＲＤチャートを図１に示す。図１中、強度５５００以上の部分は省略した。

図１から、実施例１の焼結体は、「In_2O_3で表されるビックスバイト相」及び「$Y_3In_2Ga_3O_{12}$で表されるガーネット相」を有することが分かった。

また、実施例１２について、得られた焼結体のＸＲＤチャートを図２に示す。図２中、強度１０５００以上の部分は省略した。図２から、実施例１２の焼結体は、「In_2O_3で表されるビックスバイト相」及び「$Y_3In_2Ga_3O_{12}$で表されるガーネット相」を有することが分かった。

[0069] 図１における、In_2O_3で表されるビックスバイト相の最大ピーク(２θ/θ＝３０～３１°付近)の強度と、$Y_3In_2Ga_3O_{12}$で表されるガーネット相の最大ピーク（２θ/θ＝３２°付近）の強度とを、ベースの影響を排除して用いた。

In_2O_3で表されるビックスバイト相の最大ピーク強度の、$Y_3In_2Ga_3O_{12}$で表されるガーネット相の最大ピーク強度に対する、ピーク強度比（In_2O_3／$Y_3In_2Ga_3O_{12}$）は、In_2O_3で表されるビックスバイト相の最大ピーク強度が現れる２θ/θ＝３０～３１°付近のピーク強度を、$Y_3In_2Ga_3O_{12}$で表されるガーネット相の最大ピーク強度が現れる２θ/θ＝３２°付近のピーク強度で除することで求めた。

実施例１の焼結体において、In_2O_3で表されるビックスバイト相の最大ピーク強度の、$Y_3In_2Ga_3O_{12}$で表されるガーネット相の最大ピーク強度に対する、ピーク強度比（In_2O_3／$Y_3In_2Ga_3O_{12}$）は７１．０９であった。

[0070] 図２から同様に算出した。実施例１２の焼結体において、In_2O_3で表されるビックスバイト相の最大ピーク強度の、$Y_3In_2Ga_3O_{12}$で表されるガーネット相の最大ピーク強度に対する、ピーク強度比（In_2O_3／$Y_3In_2Ga_3O_{12}$）は１０．８６であった。

[0071] 上述の実施例２～１１及び１３～１４の焼結体において、In_2O_3で表されるビックスバイト相の最大ピーク強度の、$Y_3In_2Ga_3O_{12}$で表されるガーネット相の最大ピーク強度に対する、ピーク強度比（In_2O_3／$Y_3In_2Ga_3O_{12}$）を同様に求めた。結果を表１及び２に示す。

また、実施例２～１１及び１３～１４の焼結体は、ＸＲＤチャートから、「In_2O_3で表されるビックスバイト相」及び「$Y_3In_2Ga_3O_{12}$で表さ

れるガーネット相」を有することが分かった。

[0072] また、ＸＲＤの測定から、「In_2O_3で表されるビックスバイト相」のビックスバイト構造の格子定数を求めた。結果を表１及び２に示す。

得られた格子定数から、実施例１及び２の焼結体はIn_2O_3で表されるビックスバイト相にＹ及びＧａが固溶していることが分かり、実施例１の焼結体はＹの固溶が優位的に作用しており、実施例２の焼結体はＧａの固溶が優位的に作用していることが分かった。

また、実施例３～１４の焼結体においては、得られた格子定数からIn_2O_3で表されるビックスバイト相にＹ、Ｇａ及びＳｎが固溶していることが分かった。

[0073] （$Y_3In_2Ga_3O_{12}$で表されるガーネット相の平均粒径の測定）

上述の焼結体について、電子プローブ微小分析器（ＥＰＭＡ）により、焼結体中の$Y_3In_2Ga_3O_{12}$で表されるガーネット相を５０μｍ×５０μｍの視野の中で特定し、ガーネット相の最大径を直径とする円（外接円）を仮定し、焼結体に含まれる複数のガーネット相の直径の平均値を、ガーネット相の平均粒径とした。結果を表１及び２に示す。

[0074] （相対密度の測定）

上述の焼結体について、アルキメデス法で測定した実測密度を、各構成元素の酸化物の密度及び重量比から算出される理論密度で除した値を、百分率にして、算出した。結果を表１及び２に示す。

尚、各原料粉末の密度は、密度と比重はほぼ同等であることから、化学便覧　基礎編Ｉ日本化学編　改定２版（丸善株式会社）に記載されている酸化物の比重の値を用いた。

[0075] （バルク抵抗の測定）

上述の焼結体のバルク抵抗（導電性）を、抵抗率計ロレスタ（三菱化学株式会社製、ロレスタＡＸ　ＭＣＰ-Ｔ３７０）を使用して、四探針法（ＪＩＳＲ１６３７）に基づき測定した。結果を表１及び２に示す。

[0076]

[表1]

		実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5	実施例6	実施例7
酸化物の重量比	酸化インジウム(重量%)	92.5	91.0	92.45	92.4	92.0	93.5	89.5
	酸化ガリウム(重量%)	2.5	5.0	2.5	2.5	2.5	2.0	2.0
	酸化イットリウム(重量%)	5.0	4.0	5.0	5.0	5.0	4.0	8.0
	酸化スズ(重量%)	0.0	0.0	0.05	0.1	0.5	0.5	0.5
酸化物焼結体の金属原子比	In/(In+Ga+Y)	0.904	0.881	0.904	0.904	0.904	0.922	0.875
	Ga/(In+Ga+Y)	0.036	0.072	0.036	0.036	0.036	0.029	0.029
	Y/(In+Ga+Y)	0.060	0.047	0.060	0.060	0.060	0.049	0.096
酸化物焼結体の全金属元素に対するSn原子濃度(ppm)		0	0	450.0	900.0	4501.4	4522.2	4481.8
酸化物焼結体中の結晶相		In_2O_3 $Y_3In_2Ga_3O_{12}$	In_2O_3 $Y_3In_2Ga_3O_{12}$	In_2O_3 $Y_3In_2Ga_3O_{12}$	In_2O_3 $Y_3In_2Ga_3O_{12}$	In_2O_3 $Y_3In_2Ga_3O_{12}$	In_2O_3 $Y_3In_2Ga_3O_{12}$	In_2O_3 $Y_3In_2Ga_3O_{12}$
ピーク強度比		71.09	30.41	83.73	47.63	63.25	111.19	116.16
ビックスバイト構造の格子定数(Å)		10.12010	10.10100	10.11670	10.12146	10.14129	10.13657	10.17041
$Y_3In_2Ga_3O_{12}$の平均粒径(μm)		2.1	2.4	2.3	2.2	2.5	2.1	1.9
相対密度(%)		98.2	98.6	99.1	99.1	99.4	98.9	99.3
バルク抵抗(m Ω・cm)		9.8	7.4	7.4	4.1	3.6	2.0	4.1

[0077]

[表2]

		実施例8	実施例9	実施例10	実施例11	実施例12	実施例13	実施例14
酸化物の重量比	酸化インジウム(重量%)	85.5	90.5	87.5	90.5	81.5	83.5	95.0
	酸化ガリウム(重量%)	2.0	3.0	4.0	5.0	6.0	8.0	1.5
	酸化イットリウム(重量%)	12.0	6.0	8.0	4.0	12.0	8.0	3.0
	酸化スズ(重量%)	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5
酸化物焼結体の金属原子比	In/(In+Ga+Y)	0.828	0.885	0.847	0.880	0.775	0.794	0.941
	Ga/(In+Ga+Y)	0.029	0.043	0.058	0.072	0.085	0.113	0.022
	Y/(In+Ga+Y)	0.143	0.072	0.095	0.048	0.140	0.093	0.037
酸化物焼結体の全金属元素に対するSn原子濃度(ppm)		4442.1	4480.8	4440.2	4459.0	4361.1	4359.3	4543.2
酸化物焼結体中の結晶相		In_2O_3 $Y_3In_2Ga_3O_{12}$	In_2O_3 $Y_3In_2Ga_3O_{12}$	In_2O_3 $Y_3In_2Ga_3O_{12}$	In_2O_3 $Y_3In_2Ga_3O_{12}$	In_2O_3 $Y_3In_2Ga_3O_{12}$	In_2O_3 $Y_3In_2Ga_3O_{12}$	In_2O_3 $Y_3In_2Ga_3O_{12}$
ピーク強度比		102.98	38.76	22.62	29.20	10.86	10.73	269.67
ビックスバイト構造の格子定数(Å)		10.18829	10.14162	10.14975	10.11010	10.16810	10.12196	10.13397
$Y_3In_2Ga_3O_{12}$の平均粒径(μm)		1.9	2.6	2.5	2.4	2.8	4.3	2.1
相対密度(%)		99.1	99.1	98.8	98.8	96.1	98.0	99.1
バルク抵抗(mΩ・cm)		4.0	1.5	1.6	1.9	3.7	1.8	4.9

[0078] 実施例１～１４について、常圧焼成炉を用いた大気雰囲気下での焼成方法

は、ＨＩＰ（Ｈｏｔ　Ｉｓｏｓｔａｔｉｃ　Ｐｒｅｓｓ）、放電プラズマ焼結（ＳＰＳ）又は雰囲気焼成炉を用いる技術よりも、焼結体密度が上がりにくい方法にもかかわらず、簡便な常圧焼成炉を用いた大気雰囲気下での焼成で、高密度な実施例１～１４の焼結体が得られた。

[0079]（線膨張係数、熱伝導率及びヤング率の測定）

実施例２及び実施例１１で製造した焼結体について、線膨張係数、熱伝導率及びヤング率をそれぞれ測定した。結果を表３に示す。

線膨張係数は、得られた焼結体を幅５ｍｍ、厚さ５ｍｍ、長さ１０ｍｍに切り出したものを標準試験片として用いて、昇温速度を１０℃／分にセットし、３０℃～３００℃の平均熱膨張率を熱機械分析法により、熱機械分析装置ＴＭＡ７１００（（株）日立ハイテクサイエンス　）より計測した。

熱伝導率は、得られた焼結体を直径１０ｍｍ、厚さ２ｍｍに切り出したものを標準試験片として用いて、レーザーフラッシュ法により、比熱容量を熱定数測定装置（アルバック理工製　ＴＣ－９０００特型）及び熱拡散率を熱物性測定装置（京都電子工業製　ＬＦＡ５０１）を用いて求め、これに試験片の外形寸法、重量測定より求めた密度を乗算することにより算出した。

ヤング率は、得られた焼結体を直径２０ｍｍ、厚さ５ｍｍに切り出したものを標準試験片として用いて、超音波探傷装置（Ｐａｎａｍｅｔｒｉｃｓ社製、５９００ＰＲ）で室温、大気中、板厚方向の測定で求めた。

[0080] 比較例１

酸化インジウム粉末、酸化ガリウム粉末を、それぞれ、９５：５ｗｔ％（Ｉｎ／（Ｉｎ＋Ｇａ）＝０．９２８、Ｇａ／（Ｏｎ＋Ｇａ）＝０．０７２）なるように、秤量し、ポリエチレン製のポットに入れて、乾式ボールミルにより７２時間混合粉砕し、混合粉末を作製した。

この混合粉末を金型に入れ、５００ｋｇ／ｃｍ^{2}の圧力でプレス成型体とした。この成型体を２０００ｋｇ／ｃｍ^{2}の圧力でＣＩＰにより緻密化を行った。次に、この成型体を常圧焼成炉に設置して、大気雰囲気下で、３５０℃で３時間保持した後に、１００℃／時間にて昇温し、１４３０℃にて２８時間

焼結し、その後、放置して冷却し、酸化物焼結体（焼結体）を得た。

得られた酸化物焼結体について、実施例１と同様の評価を行った。その結果、得られた焼結体の結晶構造はIn_2O_3で表されるビックスバイト構造のみであることを確認した。ビックスバイト構造の格子定数（Å）＝１０．０６８６Å、相対密度（％）＝９６．０％、バルク抵抗＝３．６ｍΩｃｍであった。

また、得られた酸化物焼結体について、実施例２と同様にして線膨張係数及び熱伝導率を評価した。測定した線膨張係数、熱伝導率の結果を表３に示す。

[0081] [表3]

使用ターゲット	実施例2	実施例11	比較例1
線膨張係数 [$\times 10^{-6}$/K]	7.8	7.8	7.5
熱伝導率 [W/(m･K)]	6.5	7.1	4.9
ヤング率 [G Pa]	175	174	-

[0082] （スパッタリングターゲットの製造）

実施例１～１４の焼結体について、スパッタリングターゲットを作製した。

[0083] 実施例１５

得られた実施例５のスパッタリングターゲットを用いて、熱酸化膜付きシリコン基板上にチャネル形状のメタルマスクを用い、酸化物半導体層（チャネル層）をスパッタリングにより成膜した。スパッタリング条件は、スパッタ圧＝１Ｐａ，酸素分圧＝５％、基板温度＝室温で行い、膜厚は５０ｎｍに設定した。次に、ソース・ドレイン形状のメタルマスクを用い、金電極を５０ｎｍ成膜した。最後に、空気中３００℃、１時間の条件でアニールすることで、チャネル長２００μｍ、チャネル幅１０００μｍのボトムゲート、トップコンタクトの簡易型ＴＦＴを得た。アニール条件としては、２５０℃～４５０℃、０．５時間～１０時間の範囲でチャネルドーピングの効果を見な

がら適宜選択した。アニール後の薄膜のＸ線回折結果より、薄膜は結晶化しており、その結晶構造はIn_2O_3型のビックスバイト構造であった。

得られたＴＦＴの特性を評価した結果、移動度＝２８cm^2／Ｖ・ｓｅｃ、電流値が10^{-8}Ａを超えるゲート電圧の値Ｖｔｈ＞０．５１Ｖ、Ｓ値（Ｓｗｉｎｇ　Ｆａｃｔｏｒ）＝０．７１であった。

産業上の利用可能性

[0084] 本発明の酸化物焼結体はスパッタリングターゲットに利用でき、本発明のスパッタリングターゲットは、酸化物半導体薄膜及び薄膜トランジスタの製造に利用できる。

[0085] 上記に本発明の実施形態及び／又は実施例を幾つか詳細に説明したが、当業者は、本発明の新規な教示及び効果から実質的に離れることなく、これら例示である実施形態及び／又は実施例に多くの変更を加えることが容易である。従って、これらの多くの変更は本発明の範囲に含まれる。

本願のパリ優先の基礎となる日本出願明細書の内容を全てここに援用する。

請求の範囲

[請求項1] In_2O_3で表されるビックスバイト相、及び
$Y_3In_2Ga_3O_{12}$で表されるガーネット相を含む酸化物焼結体。

[請求項2] In、Ga及びYの原子比が、下記の範囲である請求項１に記載の酸化物焼結体。

In／（In＋Y＋Ga）が０．６０以上０．９７以下
Ga／（In＋Y＋Ga）が０．０１以上０．２０以下
Y／（In＋Y＋Ga）が０．０２以上０．２０以下

[請求項3] 前記In_2O_3で表されるビックスバイト相の最大ピーク強度の、前記$Y_3In_2Ga_3O_{12}$で表されるガーネット相の最大ピーク強度に対する、ピーク強度比が、１～５００である請求項１又は２に記載の酸化物焼結体。

[請求項4] さらに、正四価の金属元素を含む請求項１～３のいずれかに記載の酸化物焼結体。

[請求項5] 前記正四価の金属元素が、前記In_2O_3で表されるビックスバイト相又は$Y_3In_2Ga_3O_{12}$で表されるガーネット相に固溶している請求項４に記載の酸化物焼結体。

[請求項6] 前記正四価の金属元素の含有量が、酸化物焼結体中の全金属元素に対して、原子濃度で１００～１００００ｐｐｍである、請求項４又は５に記載の酸化物焼結体。

[請求項7] 前記正四価の金属元素がＳｎである請求項４～６のいずれかに記載の酸化物焼結体。

[請求項8] 相対密度が９５％以上である請求項１～７のいずれかに記載の酸化物焼結体。

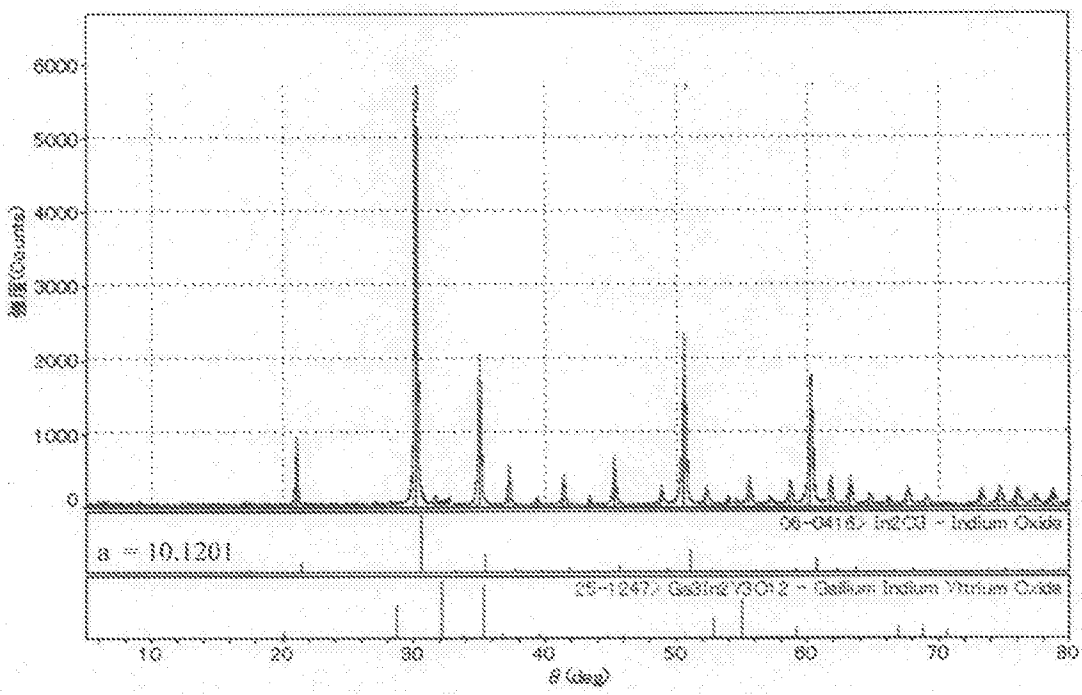
[請求項9] バルク抵抗が、３０ｍΩ・ｃｍ以下である請求項１～８のいずれかに記載の酸化物焼結体。

[請求項10] 請求項１～９のいずれかに記載の酸化物焼結体を含むスパッタリングターゲット。

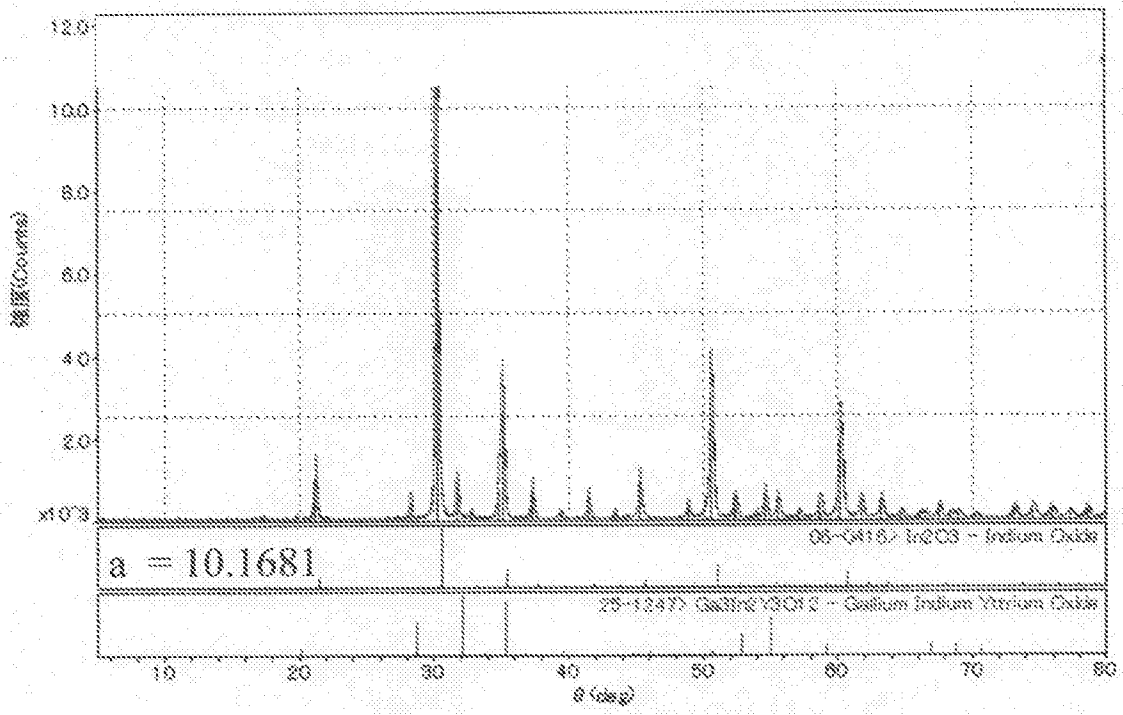
[請求項11] 請求項１０に記載のスパッタリングターゲットを用いる酸化物半導体薄膜の製造方法。

[請求項12] 請求項１１に記載の酸化物半導体薄膜を含む薄膜トランジスタの製造方法。

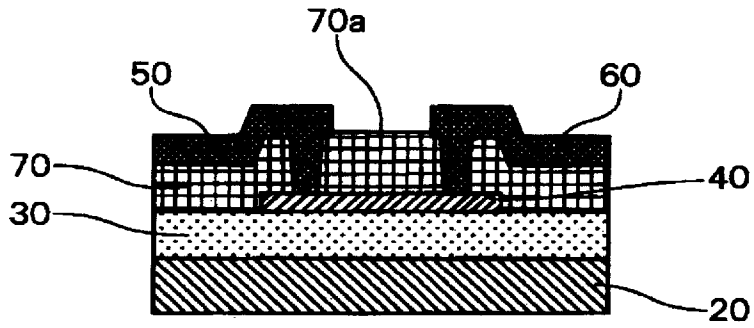
[図1]


a = 10.1201
06-0416> In2O3 - Indium Oxide
25-1247> Gd3InO12 - Gadolinium Indium Yttrium Oxide
θ (deg)

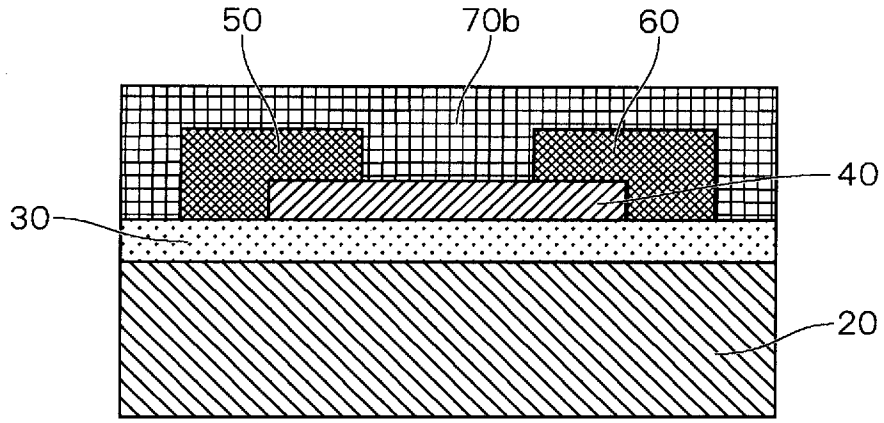
[図2]


a = 10.1681
06-0416> In2O3 - Indium Oxide
25-1247> Gd3InO12 - Gadolinium Indium Yttrium Oxide
θ (deg)

[図3]


70a
50
60
70
40
30
20

[図4]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2017/022276

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
C04B35/01(2006.01)i, *C23C14/34*(2006.01)i, *H01B1/08*(2006.01)i, *H01B5/14*(2006.01)i, *H01L21/363*(2006.01)i, *H01B13/00*(2006.01)n

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)
C04B35/01, C23C14/34, H01B1/08, H01B5/14, H01L21/363, H01B13/00

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 1996-2017
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2017 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2017

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)
JSTPlus/JSTChina/JST7580(JDreamIII), CAplus/REGISTRY(STN)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 2015/098060 A1 (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 02 July 2015 (02.07.2015), claims 1 to 10; paragraphs [0009], [0026] to [0032], [0039] to [0057], [0068] to [0085] & JP 2016-210679 A & US 2016/0343554 A1 claims 1 to 10; paragraphs [0012], [0040] to [0051], [0060] to [0084], [0096] to [0140]	1-12
A	JP 9-209134 A (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 12 August 1997 (12.08.1997), full specification (Family: none)	1-12
A	JP 2000-169219 A (Tosoh Corp.), 20 June 2000 (20.06.2000), full specification (Family: none)	1-12

☒ 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
10 August 2017 (10.08.17)	05 September 2017 (05.09.17)
Name and mailing address of the ISA/ Japan Patent Office 3-4-3,Kasumigaseki,Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915,Japan	Authorized officer Telephone No.

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (January 2015)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2017/022276

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 2010/032432 A1 (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 25 March 2010 (25.03.2010), full description & JP 10-32432 A1	1-12

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２０１７／０２２２７６

Ａ．　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　C04B35/01(2006.01)i, C23C14/34(2006.01)i, H01B1/08(2006.01)i, H01B5/14(2006.01)i, H01L21/363(2006.01)i, H01B13/00(2006.01)n

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.　C04B35/01, C23C14/34, H01B1/08, H01B5/14, H01L21/363, H01B13/00

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　１９７１－２０１７年
日本国実用新案登録公報　１９９６－２０１７年
日本国登録実用新案公報　１９９４－２０１７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）

JSTPlus/ JSTChina /JST7580 (JDreamIII), CAplus/REGISTRY (STN)

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 2015/098060 A1 (出光興産株式会社) 2015.07.02, 請求項1-10, [0009], [0026]-[0032], [0039]-[0057], [0068]-[0085] & JP 2016-210679 A & US 2016/0343554 A1, 請求項1-10, [0012], [0040]-[0051], [0060]-[0084], [0096]-[0140]	1-12
A	JP 9-209134 A (出光興産株式会社) 1997.08.12, 明細書全文（ファミリーなし）	1-12
A	JP 2000-169219 A (東ソー株式会社) 2000.06.20, 明細書全文（フ	1-12

☑　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
１０．０８．２０１７	０５．０９．２０１７

国際調査機関の名称及びあて先	特許庁審査官（権限のある職員）	４Ｔ	１１９０
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	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
	ファミリーなし）	
A	WO 2010/032432 A1 (出光興産株式会社) 2010.03.25, 明細書全文 & JP 10-32432 A1	1-12