

(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 8 月 3 日(03.08.2017)



(10) 国際公開番号
WO 2017/131111 A1

- (51) 国際特許分類:
C23C 14/34 (2006.01) *C04B 37/02* (2006.01)
C04B 35/01 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2017/002802
- (22) 国際出願日: 2017 年 1 月 26 日(26.01.2017)
- (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 2016-014270 2016 年 1 月 28 日(28.01.2016) JP
- (71) 出願人: J X 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: 館野 諭(TATENO Satoru); 〒3191535 茨城県北茨城市華川町臼場 1 8 7 - 4 J X 金属株式会社 磯原工場内 Ibaraki (JP).
- (74) 代理人: 特許業務法人高橋・林アンドパートナーズ(TAKAHASHI, HAYASHI AND PARTNER PATENT ATTORNEYS, INC.); 〒1440052 東京都大田区蒲田 5 - 2 4 - 2 損保ジャパン日本興亜蒲田ビル 9 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, 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, 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:

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

(54) Title: CYLINDRICAL CERAMIC-BASED SPUTTERING TARGET MATERIAL AND CYLINDRICAL CERAMIC-BASED SPUTTERING TARGET CONFIGURED BY JOINING ONE OR MORE CYLINDRICAL CERAMIC-BASED SPUTTERING TARGET MATERIALS TO BACKING TUBE

(54) 発明の名称: 円筒形セラミックス系スパッタリングターゲット材及び円筒形セラミックス系スパッタリングターゲット材をバックングチューブに 1 つ以上接合させることで構成される円筒形セラミックス系スパッタリングターゲット

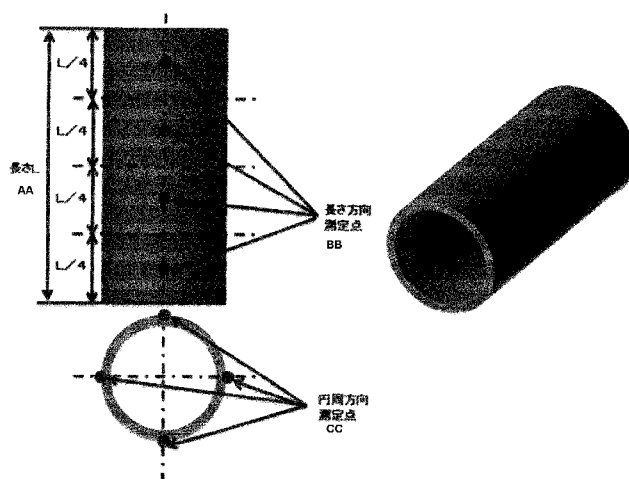


FIG. 1:
AA Length L
BB Measurement points in length direction
CC Measurement points in circumferential direction

(57) Abstract: The purpose of the present invention is to provide a cylindrical ceramic-based sputtering target material and a cylindrical ceramic-based sputtering target in which the cylindrical ceramic-based sputtering target material is joined to a backing tube, whereby it is possible to suppress the occurrence of arcing, nodules, and cracks, which were not possible to avoid merely by individually setting various bulk characteristics (crystal grain size, relative density, electrical conductivity, etc.) to appropriate ranges. Provided is a cylindrical ceramic-based sputtering target material, wherein a color difference ΔE^*ab is less than 1.0 when each of four divided regions of a target divided into four regions in the axial direction thereof are further partitioned into regions at intervals of 0° , 90° , 180° , and 270° in the circumferential direction and the color difference ΔE^*ab is measured in each region.

(57) 要約:

[続葉有]



本発明の目的は、各種バルク特性（結晶粒径、相対密度、導電率、など）を個別に好適な範囲にするだけでは防ぐことのできなかったアーキング発生、ノジュール発生、クラック発生を抑えることが可能な円筒形セラミックス系スパッタリングターゲット材及びこれをバックリングチューブに接合した円筒形セラミックス系スパッタリングターゲットを提供することを目的とする。円筒形セラミックス系スパッタリングターゲット材において、ターゲットの軸方向に4分割された領域において、4分割された領域毎に、さらに4分割された領域における円周方向に0°、90°、180°及び270°の間隔で領域を区切り、各領域内で色差 ΔE^*ab を測定した場合、色差 ΔE^*ab が1.0未満である円筒形セラミックス系スパッタリングターゲット材が提供される。

明 細 書

発明の名称：

円筒形セラミックス系スパッタリングターゲット材及び円筒形セラミックス系スパッタリングターゲット材をバックングチューブに1つ以上接合させることで構成される円筒形セラミックス系スパッタリングターゲット

技術分野

[0001] 本発明は、円筒形セラミックス系スパッタリングターゲット材及び円筒形セラミックス系スパッタリングターゲット材をバックングチューブに1つ以上接合させることで構成される円筒形セラミックス系スパッタリングターゲットに関する。特に、 IGZO （酸化物インジウムガリウム亜鉛）、 IZO （酸化インジウム亜鉛）、 ITO （酸化インジウム・スズ）などの透明酸化物半導体の焼結体の円筒形スパッタリングターゲット材（以下、「円筒形ターゲット材」という。）、及びこれらをバックングチューブに1つ以上接合された円筒形スパッタリングターゲット（以下、「円筒形ターゲット」という。）に関する。

背景技術

[0002] 円筒形ターゲット材では、各種バルク特性（結晶粒径、相対密度、導電率、など）を好適な範囲に管理することが望まれている。しかしながら、多くの測定項目（結晶粒径、相対密度、バルク抵抗値、表面粗さなど）は局所的な測定であり、各測定項目は基本的に独立して捉えられていた。また、円筒形ターゲット材の性能を検査するに際しては、製品自体の破壊を伴う検査、評価は行えない状況である。また、円筒形ターゲット材の場合、従来の平板型ターゲット材よりも製造し難い面があり、ターゲット材の組成や、焼結時におけるターゲット材内の熱の伝わり方・熱が伝わる場所の不均一性、酸素濃度の不均一性などによって、ターゲット材のバルク全体の特性として均質なものを製造することは非常に難しい。

[0003] 一方、円筒形ターゲットの使用面では一ヶ所でも異常点が存在すれば、アー

キング発生、ノジュール発生、クラック発生などの問題を生じることが知られている。実際、円筒形ターゲットでは、しばしばスパッタ時にアーキング、ノジュールなどの異常を起こすことがある。スパッタ時に異常が生じたターゲットについてスパッタに影響を与える因子に関する各測定項目（結晶粒径、相対密度、バルク抵抗値、表面粗さなど）の検査を実施しても、スパッタに影響する各因子には何等異常が無いことが多く、そのような場合、スパッタ時にアーキング発生、ノジュール発生などの異常を起こす原因が不明であった。そのため、円筒形ターゲットのスパッタに影響を与える因子に関する各測定項目（結晶粒径、相対密度、バルク抵抗値、表面粗さなど）について何ら異常がない場合は、実際にスパッタしてみないと、問題のある円筒形ターゲットまたは円筒形ターゲット材を検出できないという問題があった。かかる点からも、円筒形ターゲット材全体を総合的に、評価・管理する指標が望まれている。

[0004] 本発明者らは鋭意検討した結果、マクロ的に、すなわち総合的に観察した結果を用いた評価が重要であるという知見に至った。従来、焼結体を製造するにあたり、焼結条件などを変更することによって、相対密度や結晶粒を制御し、スパッタ時の特性向上を図ってきた。しかしながら、結晶粒の評価は、一般的に平均結晶粒子径（数百～数千倍の観察視野で撮影されたSEM写真を参考にコード法などで測定）の指標を用いていることから、円筒形ターゲット材の局所的な部分の評価にとどまっていた。

[0005] ところが、円筒形ターゲット材における結晶粒の分布としては、大きく分けて以下の4つのパターンが考えられる。第1のパターンは小さい粒子から大きい粒子に段階的に分布する場合、第2のパターンは小さい粒子の中に例えば異常粒成長した大粒子が存在する場合、第3のパターンは粒子径が二極化した場合、第4のパターンはすべての結晶粒が均一な場合である。

[0006] 上記4つのパターンのうち、問題となるのは主に第1のパターン～第3のパターンをマクロ的に見た場合に、結晶粒の群と群とで大きさが異なるパターンの存在である。結晶粒の群と群とで結晶粒の大きさが異なるパターン（す

なわち、ミクロ的に見た場合における個々の結晶粒の違いではなく、ある程度均質な結晶粒が集まった領域を群として捉えた場合、複数の群が存在し、各複数の群が異なる径の結晶粒から構成されている。)が存在する場合、群と群との界面で割れが発生することが多い。さらに結晶粒子径に応じて円筒形ターゲット材内の領域ごとに強度が異なる結果となり、表面の切削時に表面粗さも変化してしまうという問題が生じる。したがって、円筒形ターゲット材全体の特性を総合的に評価・管理することは重要である。

[0007] 特許文献1には、酸化物半導体のスパッタリングターゲットに含まれる化合物の平均粒径を $10\mu\text{m}$ 以下、好ましくは、 $6\mu\text{m}$ 以下、より好ましくは、 $4\mu\text{m}$ 以下とし、焼き上がり面を除去した後のターゲット表面部と、この表面部から平面研削盤で 2mm 研削した部分の色差 ΔE を所定の値以下に制御し、比抵抗を所定の値以下とすることにより、酸化物半導体や透明導電膜等の酸化物薄膜を成膜する際に、酸素分圧を高くする必要がなく、かつ、凝集体ができにくく異常放電の発生を抑制したスパッタリングターゲットが得られることが記載されている。しかしながら、特許文献1に記載の実験結果によれば、比抵抗を所定の値以下とすることは結晶粒径との関係でのみ確認でき、基本的に色差の制御は何ら関係がない。

[0008] 特許文献2には、ターゲットの色を制御することによりスパッタリングターゲットの成分組成の化学量論ずれを制御してスパッタ時のパーティクルの発生が著しく抑えられたターゲットが開示されている。しかしながら、色そのものを問題としており、色差 $\Delta E * a b$ を問題にしているわけではない。またその製造方法は従来の平板型ターゲットの製造方法であって、円筒形ターゲットに関するものではない。特許文献3には、スパッタリングターゲットの色ムラは、スパッタの発熱時にターゲット表面からの熱放射が不均一になり温度差が生じやすくなるなどの問題があるから、色ムラを抑えるために、添加物であるZr、Si及びAlのうち1以上を含む酸化亜鉛焼結体が提案されている。しかしながら、特許文献3に記載のスパッタリングターゲットは従来の平板型ターゲットに関するものであるうえに、添加物をターゲット

に含有させる構成で色ムラを防止しているため、ターゲットの組成がスパッタされる薄膜の所望の組成とは異なることになるため、根本的な解決策になっていない。特許文献4は、色合いの相違（色むら）は、あくまで焼結体の表面と内部における色違いを問題にしているため、ターゲットの局所的な評価に過ぎない。しかも、従来の平板型ターゲットに関するものであり、表面と内部における色違いを解消する具体的な方法も、特許文献3と同様に、添加物であるAl、Ga、B、Nb、In、Y、Scから選ばれる元素を少なくとも1種以上含ませるというものである。したがって、特許文献4に記載の発明においても、特許文献3と同様に、ターゲットの表面と内部における色違いを解消できたとしても、ターゲットの組成がスパッタされる薄膜の所望の組成とは異なることになるため、根本的な解決策にはなっていない。

先行技術文献

特許文献

[0009] 特許文献1：WO2012-153522号公報

特許文献2：特開2001-11614号公報

特許文献3：特開2010-202896号公報

特許文献4：特開2010-150107号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0010] 本発明の課題は、各種バルク特性（結晶粒径、相対密度、バルク抵抗値、表面粗さなど）を局所的に個別に好適な範囲にする、すなわち複数のパラメータは基本的に独立して捉えて評価するだけでは、防ぐことのできなかったアーキング発生、ノジュール発生、クラック発生を抑えることが可能な円筒形ターゲットを提供することである。具体的には、円筒形ターゲット材の特性に関する個別のスパッタに影響を与える因子の観察結果だけでなく、ターゲット材全体をマクロ的に観察した結果を加味してターゲット材全体の均質化を確保することを可能とする円筒形ターゲット材及びこれらの円筒形ターゲ

ット材をバックリングチューブに1つ以上接合させた円筒形ターゲットを提供することである。

課題を解決するための手段

[0011] 上記課題を解決するために、本発明者らは、円筒形ターゲット材の色差 $\Delta E^* a b$ に着目した。すなわち、スパッタに影響を与える因子に関する各測定項目（結晶粒径、相対密度、バルク抵抗値、表面粗さなど）の検査を実施しても、スパッタに影響する因子には何等異常が無いにもかかわらず、実際にスパッタしたときにアーキング発生、ノジュール発生などの異常を起こしている円筒形ターゲットは、いずれも円筒形ターゲット材の表面の色差 $\Delta E^* a b$ が領域によって異なるターゲットであった。一方、円筒形ターゲット材の表面全体の色差 $\Delta E^* a b$ が目視でもほぼ同じように見える円筒形ターゲットの場合、スパッタしたときにアーキング発生、ノジュール発生などの異常の発生が少ない傾向にある。本発明者らは鋭意検討した結果、個々の焼結体の全体を評価、管理する指標として色差 $\Delta E^* a b$ が有効であることを見出した。色差 $\Delta E^* a b$ は、各円筒形ターゲット材のバルク特性の総合的な結果とみなすことができ、この色差 $\Delta E^* a b$ を焼結体内で出来るだけ均一にすることがスパッタリングでの異常を抑制することが分かった。このように、円筒形ターゲット材の全体の特性を安定させる指標として、色差 $\Delta E^* a b$ を見出し、発明の完成に至った。

[0012] 本件明細書では、色差 $\Delta E^* a b$ は、日本電色工業社製NF333で測定した。色差は、以下の式1で表わすことができる。

$$\Delta E^* a b = \left((\Delta L^*)^2 + (\Delta a^*)^2 + (\Delta b^*)^2 \right)^{0.5} \quad (式1)$$

[0013] 結晶粒は円筒形ターゲット材の組織を代表するものであり、導電率などにも大きく影響する。色差 $\Delta E^* a b$ は、相対密度、結晶粒径、表面粗さ等のターゲットの組織や物理的形状などの影響を受ける。本発明は、相対密度、結晶粒及び表面粗さといったターゲット材の組織や物理的形状の各影響を受ける色差 Δ^* について、円筒形ターゲット材の全体的な色差 Δ^* を意識するこ

とで、バルク全体として均質なスパッタリングターゲットを提供することを可能とするものである。

[0014] 本発明によれば、円筒形ターゲット材であって、その軸方向に等間隔で4分割し、さらに4分割された領域毎に円周方向に 0° 、 90° 、 180° 及び 270° の間隔で区分することで区画された16個の各領域を測定領域とした場合に各測定領域の所定の2点における色差 ΔE^*ab が1以下であることを特徴とする円筒形ターゲット材が提供される。また、円筒形ターゲット材であって、その軸方向に等間隔で4分割し、さらに4分割された領域毎に円周方向に 0° 、 90° 、 180° 及び 270° の間隔で区分することで区画された16個の各領域を測定領域とした場合に各測定領域の所定の2点における色差 ΔE^*ab が1以下であることを特徴とするスパッタリングターゲットを1つ以上用意し、これらをTi、Cuまたはこれら金属を含む合金からなるバックリングチューブに接合された円筒形ターゲットが提供される。

[0015] 本発明にかかる円筒形ターゲット材の相対密度は、99%以上であることが望ましい。

発明の効果

[0016] 本発明によれば、円筒形ターゲット材の特性に関する個別のスパッタに影響を与える因子の観察結果だけでなく、ターゲット材全体をマクロ的・総合的に観察した結果を加味したターゲット全体の均質化を確保することにより、各種バルク特性（結晶粒径、相対密度、バルク抵抗値、表面粗さなど）を個別に好適な範囲にするだけでは、防ぐことのできなかったアーキング発生、ノジュール発生、クラック発生を抑えることが可能な円筒形ターゲット材及びこれをバックリングチューブに接合させた円筒形ターゲットを提供することが可能となる。

[0017] また、本発明によれば、複数の円筒形ターゲットをバックリングチューブに接合することで、結果的に任意の長さの円筒形スパッタリングターゲットを構成する場合に特に有利な効果が得られる。すなわち、複数のターゲットをバックリングチューブに接合する場合、接合した円筒形ターゲット材の中に1つ

でもアーキングを発生させるターゲットが含まれている場合、他の問題のない円筒形ターゲット材も無駄にになってしまうおそれがある。本発明によれば、局所的・個別的な分析では見破ることのできない問題のある円筒形ターゲット材を除いてバックリングチューブに接合することが可能となり、他の問題のない円筒形ターゲット材も無駄にになってしまうという問題を未然に防ぐことが可能となる。

図面の簡単な説明

[0018] [図1]円筒形ターゲットの結晶粒径、色差 ΔE^*ab 及び表面粗さを測定する領域を示す図

[図2]円筒形ターゲットの結晶粒径、色差 ΔE^*ab 及び表面粗さを測定する領域を示す図

[図3]円筒形ターゲットの結晶粒径、色差 ΔE^*ab 及び表面粗さを測定する領域をターゲット材の展開図として示す図

発明を実施するための形態

[0019] 以下、図面を参照して本発明に係る円筒形ターゲット材及びその製造方法について説明する。但し、本発明の円筒形ターゲット材及びその製造方法は多くの異なる態様で実施することが可能であり、以下に示す実施の形態の記載内容に限定して解釈されるものではない。なお、本実施の形態で参照する図面において、同一部分または同様な機能を有する部分には同一の符号を付し、その繰り返しの説明は省略する。

[0020] 本発明の円筒形ターゲット材は、各種原料粉の混合、粉碎、焼結等のプロセスによって作製することができる。例えば、IGZOスパッタリングターゲットの場合を例に挙げて説明する。原料粉としては、酸化インジウム(In_2O_3)粉末、酸化ガリウム(Ga_2O_3)粉末、酸化亜鉛(ZnO)粉末、及び酸化スズ(SnO_2)粉末をそれぞれ用意する。

[0021] 原料粉を所望の組成比となるように秤量後、混合を行う。混合が不十分であると、製造したターゲット中に各成分が偏析して、高抵抗率領域と低抵抗率領域が存在することになる。したがって、十分な混合が必要である。例えば

、スーパーミキサーで、回転数2000～4000rpm、回転時間3～5分混合する。またはボールミルによる長時間混合等の方法でも良く、その他の方法でも原料の均一混合を実現できる方法であれば特に限定されない。

[0022] 次に、混合粉を電気炉にて、大気雰囲気中で、900～1100℃の温度範囲で、4～6時間程度保持することで、混合粉の仮焼を行う。但し、焼結条件を含めたターゲット製造プロセス条件の適正化によっては必ずしも、仮焼を行わなくても構わない。仮焼を行う場合、微粉砕を行う。十分に微粉砕が行われないと、粒径の大きい原料粉が存在することになり、スパッタリングターゲットの面内で組成むらが生じる原因となる。仮焼粉をアトライターに投入し、回転数200～400rpm、回転時間2～4時間微粉砕を行う。

[0023] 次に、造粒を行う。これは、原料粉の流動性を良くして、プレス成型時の充填状況を充分良好なものにするためである。微粉砕した原料を固形分40～60%のスラリーとなるように水分量を調整して造粒を行う。

[0024] 次に、造粒粉を静水圧加圧装置（CIP）で、例えば、1700～1900kgf/cm²の面圧、1～3分保持の条件で成形する。

[0025] 成形された円筒形ターゲットを、電気炉にて酸素雰囲気中、例えば、1400～1500℃まで昇温した後10～30時間保持することにより、焼結体を得ることができる。

[0026] 通常、相対密度を向上させるためには出来るだけ高温、長時間で焼結することが望ましいが、結晶粒の値を制御するためには必要以上の高温、長時間焼結は避ける必要がある。焼結温度および焼結時間によって結晶粒の径および相対密度を所望の値に制御することは可能である。

[0027] 最後に焼結体の表面を研削する。研削することにより、表面の平坦性が確保される。

[0028] 研磨により表面の平坦性が確保された円筒形ターゲット材を1つ以上バックリングチューブにInまたはInを含有する接合材を介して接合することで、円筒形ターゲットとする。なお、バックリングチューブの材質は、特に制限はない。バックリングチューブに用いられる金属は、一般的にはTi、Cuまた

はTi及び／またはCuを含有する合金などである。

- [0029] 結晶粒径、表面粗さ及び色差 ΔE^*ab の関係を明らかにすべく、上記IGZOターゲットに代表される円筒形ターゲットの製造方法で、焼結時間や焼結温度条件を変えて円筒形IGZOターゲット材、円筒形ITOターゲット材及び円筒形IGZOターゲット材を各々複数製造し、結晶粒径、表面粗さ、色差 ΔE^*ab 、相対密度を測定するとともに放電試験のサンプルとした。
- [0030] なお、色差 ΔE^*ab が円筒形ターゲットの表面の全領域においてばらつきのないターゲット材を製造するための手段としては、原料粉粒径は30～60 μm とし、タップ密度は1.8g/cm³以上とすることが望ましい。さらに、CIP成形体の厚みのばらつきを0.1mm以下になるよう、機械加工を行った後に焼結するとすることも挙げられる。
- [0031] そこで、本発明の実施例にかかる円筒形ターゲット材については、いずれもCIP成形体の厚みのばらつきを0.1mm以下になるよう、機械加工を行った後に焼結した。ターゲットの形状は、実施例及び比較例ともに外径が153mm ϕ 、内径が135mm ϕ 、長さが210mmに統一した。
- [0032] 結晶粒径、表面粗さ及び色差 ΔE^*ab の測定箇所は以下のとおりである。図1、図2及び図3（ターゲット材の展開図）に示すとおり、ターゲットをターゲットの軸方向に等間隔で4分割し、さらに4分割された領域毎に円周方向に0°、90°、180°及び270°の間隔で区分することで区画された16個の各領域を測定領域とした。各測定領域における具体的な測定箇所は、各測定領域の中心（対角線の交点）とした。ただし、色差 ΔE^*ab は、各測定領域内において、1つの対角線を3等分する点（2点、図2におけるP₁及びP₂）を各測定領域内の測定点とし、かかる2点の色差 ΔE^*ab とした。このように、ターゲット材の表面の色差 ΔE^*ab をまんべんなく測定した理由は、マクロ的にターゲット材を観察した場合、円筒形ターゲット材の色差 ΔE^*ab は、ターゲットの軸方向の両端の領域とその間の領域で大きく異なる場合があること、本件発明はターゲット材全体を総合的に評価することを目的とするものであることを考慮したためである。また、円筒

形ターゲット材の円周方向においても、色差 ΔE^*ab が大きく異なる場合があるためである。

[0033] このような状況を引き起こす1つの要因として、結晶の分布として、結晶粒の大きさが異なる群が形成されてしまっていることが挙げられる。これは、円筒形ターゲット材は、平板型ターゲット材と異なり、焼結時において、円筒形ターゲット材は軸方向にたてた状態で焼結されるため、円筒形ターゲット材の軸方向の領域によって熱の伝わり方が異なるためである。他の要因としては、円筒形ターゲット材の焼結前の円筒形ターゲット材のCIP成形体の厚さのばらつきが挙げられる。

[0034] そこで、焼結時の熱の伝わり方の違い、円筒形ターゲット材のCIP成形体の厚さのばらつきが出やすい領域の分けとして、上記の結晶粒径、表面粗さ及び色差 ΔE^*ab の測定領域と規定した。なお、円筒形ターゲット材の軸方向の長さが210mmを超える場合には、50mm毎に追加で、同様の測定を行うことが望ましい。

[0035] 結晶粒径は、以下の方法で測定した。まず、ターゲットから観察用サンプルを切り出し、切り出したサンプルの表面について鏡面研磨を施した。鏡面研磨されたサンプルの表面を走査型電子顕微鏡（SEM）で表面組織写真を撮影し、コード法の評価方法で複数視野（5点）の結晶粒径を測定し、平均値で評価した。

[0036] 相対密度の測定は、円筒形ターゲット材から測定用サンプルを20cm²切り出し、切り出した測定用サンプルをアルキメデス法による密度測定することで求めた。なお、本明細書で言及する相対密度は、（実測密度／理論密度）×100（%）で算出した。ここで、「実測密度」とは重量／体積を各測定値から計算できるが、一般的にはアルキメデス法が用いられ、本発明でも同方法を採用する。理論密度とは、焼結体の各構成元素において、酸素を除いた元素の酸化物の理論密度から算出される密度の値である。例えば、ITOターゲットであれば、各構成元素であるインジウム、スズ、酸素のうち、酸素を除いたインジウム、スズの酸化物として、酸化インジウム（In₂O₃）と

酸化スズ (SnO_2) を理論密度の算出に用いる。ここで、焼結体中のインジウムとスズの元素分析値 (at %, 又は質量%) から、酸化インジウム (In_2O_3) と酸化スズ (SnO_2) の質量比に換算する。例えば、換算の結果、酸化インジウムが90質量%、酸化スズが10質量%のITOターゲットの場合、理論密度は、(In_2O_3 の密度 (g/cm^3) $\times$ 90 + SnO_2 の密度 (g/cm^3) $\times$ 10) $\div$ 100 (g/cm^3) として算出する。 In_2O_3 の理論密度は7.18 g/cm^3 、 SnO_2 の理論密度は6.95 g/cm^3 として計算し、理論密度は7.157 (g/cm^3) と算出される。また、各構成元素がZnであればZnO、GaであればGa₂O₃の酸化物として算出することができる。ZnOの理論密度は5.67 g/cm^3 、Ga₂O₃の理論密度は5.95 g/cm^3 として計算する。

[0037] 導電率 (表面バルク抵抗値) の測定は、四探針式抵抗測定器を用いて行った。表面粗さ (算術平均粗さ、Ra) の測定は、触針式の測定装置を用いて、1 mm以下の範囲で測定した値を複数点比較して代表値を表面粗さ (Ra) の値とした。算術平均粗さは、JIS B 0601-2001に基づくものであり、測定装置としてはSJ-210 (ミットヨ製) などがあげられる。

[0038] 放電試験は、スパッタリングガスにArを使用し、スパッタリング圧力は0.6 Paとし、スパッタリングガス流量は300 sccmであり、スパッタリング電力は4.0 W/ cm^2 という条件で行った。

[0039] 実施例1のITOからなる円筒形ターゲット材について軸方向に等間隔で4分割し、ターゲットの軸方向に等間隔で4分割し、さらに4分割された領域毎に円周方向に0°、90°、180°及び270°の間隔で区分することで区画された16個の各領域内で測定した結晶粒径、表面粗さ及び色差 ΔE^*ab 、相対密度及びバルク抵抗の測定結果は以下の表1となった。なお、以下の表において、円周方向に90°ずつずらした4箇所の領域は、各々、A、BC及びDと表現されている。

[0040]

[表1]

	結晶粒径 (μm)		色差 ($\Delta E^*a\ b$)		表面粗さ (R_a (μm))		相対密度 (%)	バルク 抵抗 ($\text{m}\Omega/\text{cm}$)	放電 試験
第1 領域	A	4.3	A	0.397	A	<0.5	99	0.12	異常なし
	B	4.3	B	0.245	B	<0.5			
	C	4.1	C	0.177	C	<0.5			
	D	4.3	D	0.154	D	<0.5			
第2 領域	A	4.3	A	0.181	A	<0.5	99	0.12	
	B	4.3	B	0.171	B	<0.5			
	C	4.1	C	0.133	C	<0.5			
	D	4.3	D	0.265	D	<0.5			
第3 領域	A	4.2	A	0.110	A	<0.5	99	0.11	
	B	4.2	B	0.204	B	<0.5			
	C	4.2	C	0.175	C	<0.5			
	D	4.1	D	0.175	D	<0.5			
第4 領域	A	4.2	A	0.264	A	0.5	99	0.13	
	B	4.2	B	0.139	B	<0.5			
	C	4.2	C	0.098	C	<0.5			
	D	4.2	D	0.140	D	<0.5			

[0041] 実施例2のITOからなる円筒形ターゲット材について軸方向に等間隔で4分割し、ターゲットの軸方向に等間隔で4分割し、さらに4分割された領域毎に円周方向に 0° 、 90° 、 180° 及び 270° の間隔で区分することで区画された16個の各領域内の結晶粒径、表面粗さ及び色差 ΔE^*ab 、相対密度及びバルク抵抗の測定結果は以下の表2となった。

[0042]

[表2]

	結晶粒径 (μm)		色差 ($\Delta E^* a b$)		表面粗さ ($R a$ (μm))		相対密度 (%)	バルク 抵抗 ($\text{m}\Omega / \text{cm}$)	放電 試験
第1 領域	A	4.2	A	0.388	A	<0.5	99	0.12	異常なし
	B	4.2	B	0.339	B	<0.5			
	C	4.2	C	0.146	C	<0.5			
	D	4.2	D	0.260	D	<0.5			
第2 領域	A	4.2	A	0.331	A	<0.5	99	0.12	
	B	4.2	B	0.410	B	<0.5			
	C	4.2	C	0.313	C	<0.5			
	D	4.2	D	0.231	D	<0.5			
第3 領域	A	4.2	A	0.273	A	<0.5	99	0.12	
	B	4.2	B	0.385	B	<0.5			
	C	4.2	C	0.177	C	<0.5			
	D	4.2	D	0.278	D	<0.5			
第4 領域	A	4.3	A	0.392	A	<0.5	99	0.12	
	B	4.3	B	0.347	B	<0.5			
	C	4.1	C	0.317	C	<0.5			
	D	4.3	D	0.287	D	<0.5			

[0043] 比較例1のITOからなる円筒形ターゲット材について軸方向に等間隔で4分割し、ターゲットの軸方向に等間隔で4分割し、さらに4分割された領域毎に円周方向に 0° 、 90° 、 180° 及び 270° の間隔で区分することで区画された16個の各領域内で結晶粒径、表面粗さ及び色差 ΔE^*ab 、相対密度及びバルク抵抗の測定結果は以下の表3となった。

[0044]

[表3]

	結晶粒径 (μm)		色差 ($\Delta E^* a b$)		表面粗さ ($R a$ (μm))		相対密度 (%)	バルク 抵抗 ($\text{m}\Omega / \text{cm}$)	放電 試験
第1 領域	A	4.3	A	0.357	A	<0.5	99	0.12	放電後、第 1 領域、及 び第4領域 にてノジュ ール発生を 確認。
	B	4.3	B	0.409	B	<0.5			
	C	4.3	C	1.097	C	<0.5			
	D	4.3	D	0.513	D	<0.5			
第2 領域	A	4.3	A	0.416	A	<0.5	99	0.12	
	B	4.3	B	0.663	B	<0.5			
	C	4.1	C	0.926	C	<0.5			
	D	4.3	D	0.441	D	<0.5			
第3 領域	A	4.1	A	0.190	A	<0.5	99	0.12	
	B	4.1	B	0.197	B	<0.5			
	C	4.1	C	0.955	C	<0.5			
	D	4.1	D	0.328	D	<0.5			
第4 領域	A	4.3	A	0.299	A	<0.5	99	0.12	
	B	4.3	B	0.275	B	<0.5			
	C	4.0	C	1.162	C	<0.5			
	D	4.3	D	0.360	D	<0.5			

[0045] 実施例3のIGZOからなる円筒形ターゲット材について軸方向に等間隔で4分割し、ターゲットの軸方向に等間隔で4分割し、さらに4分割された領域毎に円周方向に 0° 、 90° 、 180° 及び 270° の間隔で区分することで区画された16個の各領域内で結晶粒径、表面粗さ及び色差 ΔE^*ab 、相対密度及びバルク抵抗の測定結果は以下の表4となった。

[0046]

[表4]

	結晶粒径 (μm)		色差 ($\Delta E^* a b$)		表面粗さ ($R a$ (μm))		相対密度 (%)	バルク 抵抗 ($\text{m}\Omega / \text{cm}$)	放電 試験
第1 領域	A	7.8	A	0.456	A	<0.5	99	66.5	異常なし
	B	7.8	B	0.658	B	<0.5			
	C	7.9	C	0.655	C	<0.5			
	D	7.9	D	0.470	D	<0.5			
第2 領域	A	7.7	A	0.643	A	<0.5	99	63.3	
	B	7.8	B	0.646	B	<0.5			
	C	7.7	C	0.511	C	<0.5			
	D	7.7	D	0.503	D	<0.5			
第3 領域	A	7.8	A	0.291	A	<0.5	99	66.2	
	B	7.7	B	0.477	B	<0.5			
	C	7.8	C	0.524	C	<0.5			
	D	7.8	D	0.368	D	<0.5			
第4 領域	A	7.7	A	0.275	A	<0.5	99	63.5	
	B	7.7	B	0.260	B	<0.5			
	C	7.7	C	0.427	C	<0.5			
	D	7.7	D	0.340	D	<0.5			

[0047] 実施例4のIGZOからなる円筒形ターゲット材について軸方向に等間隔で4分割し、ターゲットの軸方向に等間隔で4分割し、さらに4分割された領域毎に円周方向に 0° 、 90° 、 180° 及び 270° の間隔で区分することで区画された16個の各領域内で結晶粒径、表面粗さ及び色差 $\Delta E^* a b$ 、相対密度及びバルク抵抗の測定結果は以下の表5となった。

[0048]

[表5]

	結晶粒径 (μm)		色差 ($\Delta E^*a\ b$)		表面粗さ (R_a (μm))		相対密度 (%)	バルク 抵抗 ($\text{m}\Omega/\text{cm}$)	放電 試験
第1 領域	A	8.2	A	0.880	A	<0.5	99	70.2	異常なし
	B	8.1	B	0.897	B	<0.5			
	C	8.2	C	0.698	C	<0.5			
	D	8.2	D	0.674	D	<0.5			
第2 領域	A	8.1	A	0.826	A	<0.5	99	68.8	
	B	8.1	B	0.702	B	<0.5			
	C	8.1	C	0.838	C	<0.5			
	D	8.1	D	0.769	D	<0.5			
第3 領域	A	8.1	A	0.795	A	<0.5	99	68.3	
	B	8.1	B	0.827	B	<0.5			
	C	8.1	C	0.735	C	<0.5			
	D	8.1	D	0.816	D	<0.5			
第4 領域	A	8.1	A	0.784	A	<0.5	99	67.5	
	B	8.1	B	0.858	B	<0.5			
	C	8.1	C	0.921	C	<0.5			
	D	8.1	D	0.674	D	<0.5			

[0049] 比較例2のIGZOからなる円筒形ターゲット材について軸方向に等間隔で4分割し、ターゲットの軸方向に等間隔で4分割し、さらに4分割された領域毎に円周方向に 0° 、 90° 、 180° 及び 270° の間隔で区分することで区画された16個の各領域内で結晶粒径、表面粗さ及び色差 ΔE^*ab 、相対密度及びバルク抵抗の測定結果は以下の表6となった。

[0050]

[表6]

	結晶粒径 (μm)		色差 ($\Delta E^* a b$)		表面粗さ ($R a$ (μm))		相対密度 (%)	バルク 抵抗 ($\text{m}\Omega / \text{cm}$)	放電 試験
第1 領域	A	15.2	A	1.349	A	<0.5	99	60.3	放電後、第 1 領域及び 第4領域周 辺にてクラ ック発生を 確認
	B	15.8	B	1.074	B	<0.5			
	C	15.5	C	1.364	C	<0.5			
	D	15.2	D	1.380	D	<0.5			
第2 領域	A	7.8	A	0.980	A	<0.5	99	65.3	
	B	7.7	B	0.671	B	<0.5			
	C	7.7	C	0.796	C	<0.5			
	D	7.7	D	0.417	D	<0.5			
第3 領域	A	7.7	A	0.493	A	<0.5	99	70.3	
	B	7.7	B	0.904	B	<0.5			
	C	7.7	C	0.550	C	<0.5			
	D	7.7	D	0.709	D	<0.5			
第4 領域	A	15.5	A	1.207	A	<0.5	99	61.3	
	B	15.5	B	1.400	B	<0.5			
	C	15.5	C	1.332	C	<0.5			
	D	15.5	D	1.528	D	<0.5			

[0051] 実施例5のIZOからなる円筒形ターゲット材について軸方向に等間隔で4分割し、ターゲットの軸方向に等間隔で4分割し、さらに4分割された領域毎に円周方向に 0° 、 90° 、 180° 及び 270° の間隔で区分することで区画された16個の各領域内で結晶粒径、表面粗さ及び色差 $\Delta E^* a b$ 、相対密度及びバルク抵抗の測定結果は以下の表7となった。

[0052]

[表7]

	結晶粒径 (μm)		色差 ($\Delta E^* a b$)		表面粗さ ($R a$ (μm))		相対密度 (%)	バルク 抵抗 ($\text{m}\Omega / \text{cm}$)	放電 試験
第1 領域	A	4.1	A	0.151	A	<0.5	99	2.42	異常なし
	B	4.1	B	0.145	B	<0.5			
	C	4.1	C	0.058	C	<0.5			
	D	4.1	D	0.116	D	<0.5			
第2 領域	A	4.2	A	0.234	A	<0.5	99	2.81	
	B	4.2	B	0.229	B	<0.5			
	C	4.2	C	0.247	C	<0.5			
	D	4.2	D	0.168	D	<0.5			
第3 領域	A	4.2	A	0.185	A	<0.5	99	2.64	
	B	4.2	B	0.210	B	<0.5			
	C	4.2	C	0.205	C	<0.5			
	D	4.2	D	0.205	D	<0.5			
第4 領域	A	4.2	A	0.205	A	<0.5	99	2.71	
	B	4.2	B	0.153	B	<0.5			
	C	4.2	C	0.114	C	<0.5			
	D	4.2	D	0.154	D	<0.5			

[0053] 実施例6のIZOからなる円筒形ターゲット材について軸方向に等間隔で4分割し、ターゲットの軸方向に等間隔で4分割し、さらに4分割された領域毎に円周方向に 0° 、 90° 、 180° 及び 270° の間隔で区分することで区画された16個の各領域内で結晶粒径、表面粗さ及び色差 $\Delta E^* a b$ 、相対密度及びバルク抵抗の測定結果は以下の表8となった。

[0054]

[表8]

	結晶粒径 (μm)		色差 ($\Delta E^* a b$)		表面粗さ ($R a$ (μm))		相対密度 (%)	バルク 抵抗 ($\text{m}\Omega / \text{cm}$)	放電 試験
第1 領域	A	4.2	A	0.605	A	<0.5	99	3.46	異常なし
	B	4.2	B	0.601	B	<0.5			
	C	4.2	C	0.493	C	<0.5			
	D	4.2	D	0.494	D	<0.5			
第2 領域	A	4.2	A	0.305	A	<0.5	99	2.81	
	B	4.2	B	0.314	B	<0.5			
	C	4.2	C	0.666	C	<0.5			
	D	4.2	D	0.493	D	<0.5			
第3 領域	A	4.2	A	0.391	A	<0.5	99	2.64	
	B	4.2	B	0.280	B	<0.5			
	C	4.2	C	0.551	C	<0.5			
	D	4.2	D	0.458	D	<0.5			
第4 領域	A	4.2	A	0.557	A	<0.5	99	2.71	
	B	4.2	B	0.522	B	<0.5			
	C	4.2	C	0.807	C	<0.5			
	D	4.2	D	0.501	D	<0.5			

[0055] 比較例3のIZOからなる円筒形ターゲット材について軸方向に等間隔で4分割し、ターゲットの軸方向に等間隔で4分割し、さらに4分割された領域毎に円周方向に 0° 、 90° 、 180° 及び 270° の間隔で区分することで区画された16個の各領域内で結晶粒径、表面粗さ及び色差 ΔE^*ab 、相対密度及びバルク抵抗の測定結果は以下の表9となった。

[0056]

[表9]

	結晶粒径 (μm)		色差 ($\Delta E^* a b$)		表面粗さ ($R a$ (μm))		相対密度 (%)	バルク 抵抗 ($\text{m}\Omega/\text{cm}$)	放電 試験
第1 領域	A	4.2	A	0.791	A	<0.5	99	2.98	ターゲット 全体におい てクラック 発生が確認 された
	B	4.2	B	0.578	B	<0.5			
	C	4.2	C	0.576	C	<0.5			
	D	4.0	D	2.150	D	<0.5			
第2 領域	A	4.2	A	0.715	A	<0.5	99	2.87	
	B	4.2	B	0.359	B	<0.5			
	C	4.2	C	0.722	C	<0.5			
	D	4.0	D	1.545	D	<0.5			
第3 領域	A	4.2	A	0.834	A	<0.5	99	2.85	
	B	4.2	B	0.717	B	<0.5			
	C	4.2	C	0.318	C	<0.5			
	D	4.2	D	1.722	D	<0.5			
第4 領域	A	4.2	A	0.465	A	<0.5	99	2.98	
	B	4.2	B	0.202	B	<0.5			
	C	4.2	C	0.865	C	<0.5			
	D	4.1	D	3.045	D	<0.5			

[0057] 比較例1では、放電試験において、第1領域及び第4領域においてノジュール発生が確認された。第1領域のC領域の色差 ΔE^*ab は1.097であった。第4領域ではC領域の色差 ΔE^*ab が1.162であった。各領域内の色差 ΔE^*ab が1.0を超える程度にターゲット材の色が異なるとノジュール発生の原因になると推測される。一方、実施例1及び2では、隣接する領域の色差 ΔE^*ab は、いずれも1.0未満である。

[0058] 比較例2では、放電試験において、第1領域及び第4領域周辺においてクラック発生が確認された。第1領域のD領域の色差 ΔE^*ab では、1.364であった。また、第4領域のDの色差 ΔE^*ab では、1.528であった。各領域内の色差 ΔE^*ab が1.0を超える程度にターゲット材の色が異なるとクラック発生の原因になると推測される。一方、実施例3及び4では、各領域内の色差 ΔE^*ab は1.0未満である。

[0059] 比較例3では、放電試験において、円筒形ターゲット材全体においてクラ

ック発生が確認された。第1領域のD領域の色差 ΔE^*ab は、2.150であった。また、第3領域のDの色差 ΔE^*ab は、1.722であった。さらに、第4領域のD領域の色差 ΔE^*ab は、3.045であった。各領域内の色差 ΔE^*ab が1.0を超える程度にターゲット材の色が異なるとクラック発生の原因と推測される。一方、実施例5及び6では、各領域内の色差 ΔE^*ab は1.0未満である。

[0060] 以上より、各領域内の色差 ΔE^*ab を少なくとも1.0未満とするとスパッタ時にアーキング、ノジュールなどが発生しないといえることができる。一方、色差 ΔE^*ab が1.0以上になるとアーキングなどが発生している。色差 ΔE^*ab が1.0～3.0程度の場合、目視ではほぼ色差は目立たないが、実験によって、このように目視では判別できないような色差があってもアーキングなどが生じていることが判明した。なお、結晶粒径と色差 ΔE^*ab との関係についてみると、例えば、IGZOの円筒形ターゲット材の比較である比較例2の分析結果である表6を見ると、結晶粒径の大きさと色差 ΔE^*ab との間に相関があることが分かる。しかし、IZOの円筒形ターゲットの比較例である比較例3を見ると、結晶粒径は、IZOの円筒形ターゲットの実施例の粒径と同じ大きさであるにもかかわらず、色差 ΔE^*ab の値は、ばらつき、クラックが発生した。一方、各領域内の色差 ΔE^*ab は1.0未満に制御されている実施例では、クラックやノジュールの発生が生じていないことから、各領域内の色差 ΔE^*ab は1.0未満に制御されてさえいれば、クラックやノジュールの発生を防止することが可能となることが分かる。

[0061] 本発明は上記の実施形態に限られたものではなく、趣旨を逸脱しない範囲で適宜変更することが可能である。

請求の範囲

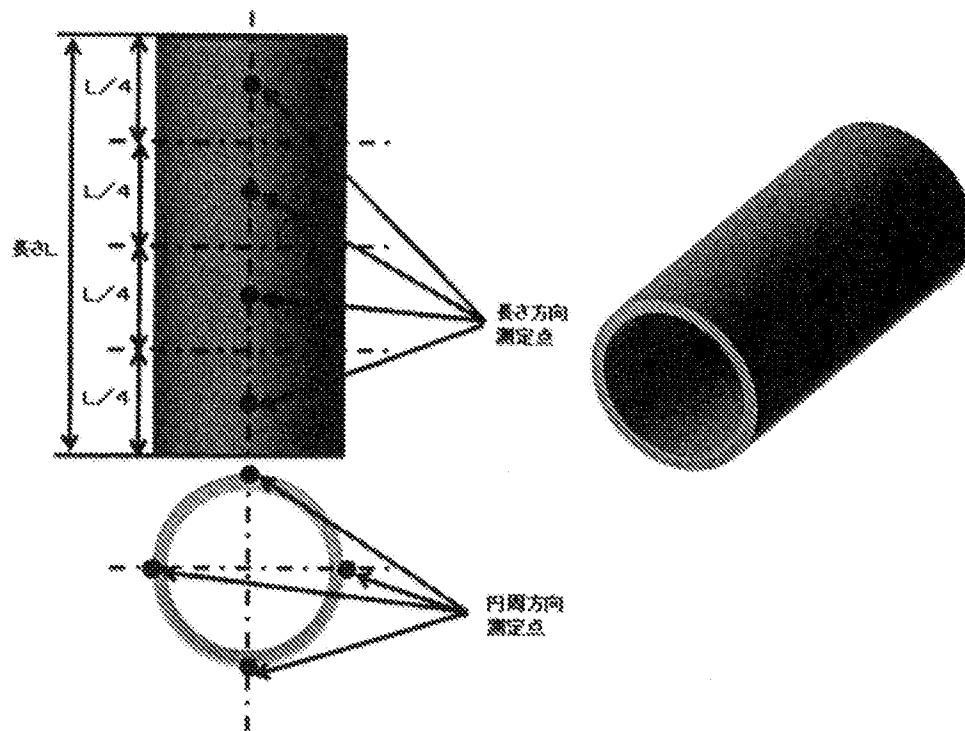
- [請求項1] 軸方向の長さが210mm以下の円筒形セラミックス系スパッタリングターゲット材であって、
- 前記円筒形セラミックス系スパッタリングターゲット材を軸方向に等間隔で4分割し、さらに4分割された領域毎に円周方向に0°、90°、180°及び270°の間隔で区分することで区画された各領域内における2点の色差 ΔE^*ab がいずれも1.0未満であることを特徴とする円筒形セラミックス系スパッタリングターゲット材。
- [請求項2] 軸方向の長さが210mmを超える円筒形セラミックス系スパッタリングターゲット材であって、
- 前記円筒形セラミックス系スパッタリングターゲット材の一端部から210mmまでの間において軸方向に等間隔で4分割し、さらに4分割された領域毎に円周方向に0°、90°、180°及び270°の間隔で区分することで区画された各領域内における2点の色差 ΔE^*ab がいずれも1.0未満であり、
- 前記円筒形セラミックス系スパッタリングターゲット材の一端部から210mmを超える領域において、軸方向に50mm毎に分割し、さらに分割した領域毎に円周方向に0°、90°、180°及び270°の間隔で区分することで区画された各領域内における2点の色差 ΔE^*ab がいずれも1.0未満であることを特徴とする円筒形セラミックス系スパッタリングターゲット材。
- [請求項3] 前記測定領域内で測定した相対密度がいずれも99%以上であることを特徴する請求項1又は2に記載の円筒形セラミックス系スパッタリングターゲット材。
- [請求項4] 前記測定領域内で測定した平均結晶粒径がいずれも10 μm 以下であることを特徴とする請求項1～3のいずれか1項に記載の円筒形セラミックス系スパッタリングターゲット材。
- [請求項5] 前記測定領域内で測定した表面粗さがいずれも0.5 μm 以下である

ことを特徴とする請求項1～4のいずれか1項に記載の円筒形セラミックス系スパッタリングターゲット材。

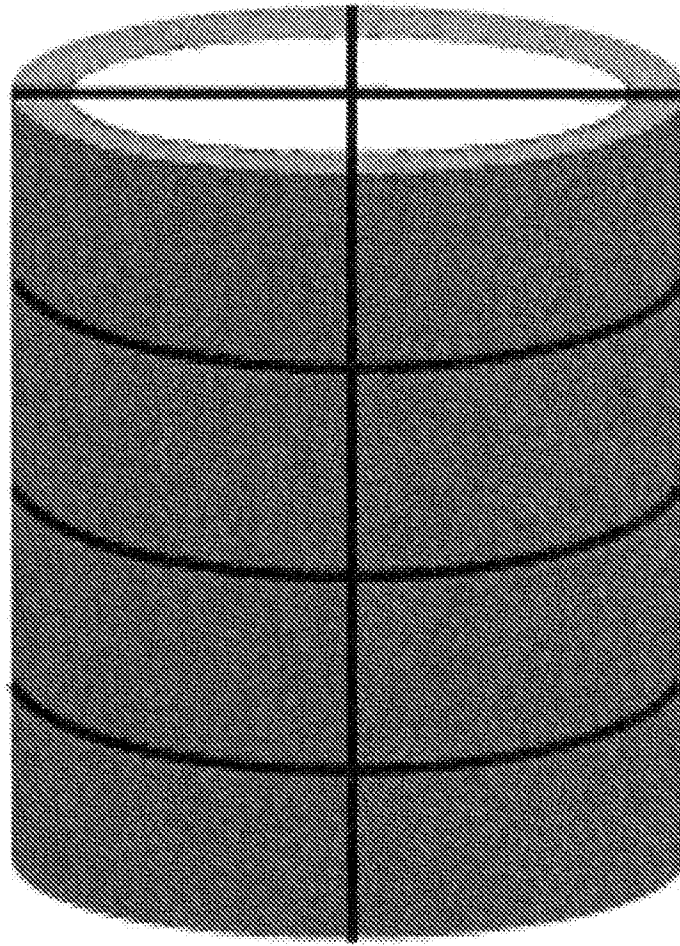
[請求項6] 前記円筒形セラミックス系スパッタリングターゲット材は、ITO、IGZOまたはIZOからなることを特徴する請求項1～5のいずれか1項に記載の円筒形セラミックス系スパッタリングターゲット材。

[請求項7] 請求項1～6のいずれか1項に記載の円筒形セラミックス系スパッタリングターゲット材が1つ以上バックリングチューブに接合された円筒形セラミックス系スパッタリングターゲット。

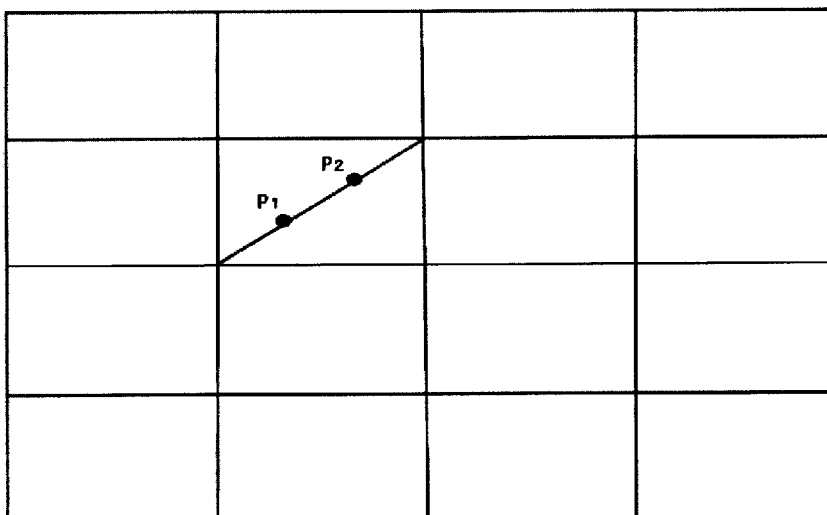
[図1]



[図2]



[図3]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2017/002802

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C23C14/34(2006.01)i, C04B35/01(2006.01)i, C04B37/02(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)

C23C14/34, C04B35/01, C04B37/02

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)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	WO 2012/153507 A1 (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 15 November 2012 (15.11.2012), paragraphs [0014] to [0069] & US 2014/0103268 A1 paragraphs [0025] to [0139] & CN 103534382 A & KR 10-2014-0027238 A	1-7
Y	JP 2010-202896 A (Taiheiyo Cement Corp.), 16 September 2010 (16.09.2010), paragraphs [0012] to [0039] (Family: none)	1-7
Y	JP 2015-183284 A (Sumitomo Metal Mining Co., Ltd.), 22 October 2015 (22.10.2015), paragraphs [0014] to [0106] (Family: none)	1, 4-7

☒ 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
29 March 2017 (29.03.17)

Date of mailing of the international search report
11 April 2017 (11.04.17)

Name and mailing address of the ISA/
Japan Patent Office
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2017/002802

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2015-096656 A (Mitsui Mining & Smelting Co., Ltd.), 21 May 2015 (21.05.2015), paragraphs [0012] to [0105] (Family: none)	2-7

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））

Int.Cl. C23C14/34(2006.01)i, C04B35/01(2006.01)i, C04B37/02(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. C23C14/34, C04B35/01, C04B37/02

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）

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
Y	W0 2012/153507 A1 (出光興産株式会社) 2012. 11. 15, [0014]～[0069] & US 2014/0103268 A1[0025]-[0139] & CN 103534382 A & KR 10-2014-0027238 A	1-7
Y	JP 2010-202896 A (太平洋セメント株式会社) 2010. 09. 16, [0012] ～[0039] (ファミリーなし)	1-7
Y	JP 2015-183284 A (住友金属鉱山株式会社) 2015. 10. 22, [0014]～ [0106] (ファミリーなし)	1, 4-7

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

29. 03. 2017

国際調査報告の発送日

11. 04. 2017

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁（ISA/J P）

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）

今井 淳一

4G

9055

電話番号 03-3581-1101 内線 3416

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
Y	JP 2015-096656 A (三井金属鉱業株式会社) 2015.05.21, [0012]～ [0105] (ファミリーなし)	2-7