



(19)
Bundesrepublik Deutschland
Deutsches Patent- und Markenamt

(10) **DE 602 14 683 T2** 2007.09.13

(12) **Übersetzung der europäischen Patentschrift**

(97) **EP 1 366 203 B1**

(21) Deutsches Aktenzeichen: **602 14 683.6**

(86) PCT-Aktenzeichen: **PCT/US02/05033**

(96) Europäisches Aktenzeichen: **02 726 582.6**

(87) PCT-Veröffentlichungs-Nr.: **WO 2002/070765**

(86) PCT-Anmeldetag: **20.02.2002**

(87) Veröffentlichungstag
der PCT-Anmeldung: **12.09.2002**

(97) Erstveröffentlichung durch das EPA: **03.12.2003**

(97) Veröffentlichungstag
der Patenterteilung beim EPA: **13.09.2006**

(47) Veröffentlichungstag im Patentblatt: **13.09.2007**

(51) Int Cl.⁸: **C22C 27/02 (2006.01)**

C23C 14/34 (2006.01)

C22F 1/18 (2006.01)

(30) Unionspriorität:

269983 P 20.02.2001 US

(73) Patentinhaber:

H.C. Starck, Inc., Newton, Mass., US

(74) Vertreter:

**Feldhues, M., Dipl.-Chem. Dr.rer.nat., Pat.-Anw.,
51467 Bergisch Gladbach**

(84) Benannte Vertragsstaaten:

**AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT,
LI, LU, MC, NL, PT, SE, TR**

(72) Erfinder:

**JEPSON, Peter R., Newton, MA 02461, US;
UHLENHUT, Henning, Newton, MA 02461-1951,
US; KUMAR, Prabhat, Newton, MA 02461, US**

(54) Bezeichnung: **PLATTEN AUS REFRAKTÄREM METALL MIT EINHEITLICHER TEXTUR UND VERFAHREN ZU IH-
RER HERSTELLUNG**

Anmerkung: Innerhalb von neun Monaten nach der Bekanntmachung des Hinweises auf die Erteilung des europäischen Patents kann jedermann beim Europäischen Patentamt gegen das erteilte europäische Patent Einspruch einlegen. Der Einspruch ist schriftlich einzureichen und zu begründen. Er gilt erst als eingelegt, wenn die Einspruchsgebühr entrichtet worden ist (Art. 99 (1) Europäisches Patentübereinkommen).

Die Übersetzung ist gemäß Artikel II § 3 Abs. 1 IntPatÜG 1991 vom Patentinhaber eingereicht worden. Sie wurde vom Deutschen Patent- und Markenamt inhaltlich nicht geprüft.

Beschreibung

Gebiet der Erfindung

[0001] Die vorliegende Erfindung betrifft ganz allgemein verbesserte Refraktärmetallplatten zur Verwendung als Kathodenzerstäubungstargets sowie für weitere Anwendungszwecke zur Bildung einer Platte mit hoher Reinheit, feinteiliger Korngröße, hoher Festigkeit und einheitlich texturierter Struktur.

Hintergrund der Erfindung

[0002] Kathodenzerstäubungstargets werden in Plasma-Kathodenzerstäubungsverfahren zur Erzeugung dünner Metallfilme verwendet, die auf verschiedenen Anwendungsgebieten, z.B. als Oberfläche, auf der Dampfblasen in einem Tintenstrahl-Drucker gebildet werden, und des Weiteren als Sperrschicht zwischen Kupfer und Silicium in integrierten Schaltkreisen zum Einsatz gelangen. Dünne Filme aus Tantaloxid sind auch z.B. in Wellenlängen-Multiplex(WDM)-Vorrichtungen und, potentiell, in elektrischen Kondensatoren von praktischem Nutzen.

[0003] Refraktärmetall-Kathodenzerstäubungstargets stellen ein breiteres Bedarfsgebiet für eine mikrostrukturelle Einheitlichkeit in Refraktärmetallplatten dar. Bei gemäß dem Stand der Technik hergestellten Targets verursachte die Heterogenität der Textur, die in mit bekannten Verfahren hergestellten Kathodenzerstäubungstargetplatten vorgefunden wird, eine nicht voraussagbare Kathodenzerstäubungsrate (definiert als Zahl der Metallatome, die auf das Substrat pro Aufprall-Kathodenzerstäubungsgas, wie einem Argon-Ion, kathodenzerstäubt werden). Auch verursacht die Texturheterogenität eine Richtungsheterogenität, in welcher die kathodenzerstäubten Atome das Target wieder verlassen.

[0004] Die nicht gegebene Voraussagbarkeit der Kathodenzerstäubungsrate und Kathodenzerstäubungsrichtung verursacht eine Dickenabweichung des von Punkt zu Punkt auf dem Substrat erzeugten Films sowie auch eine Abweichung der Durchschnittsdicke des auf dem Substrat von Substrat zu Substrat und von Target zu Target erzeugten Films.

[0005] In vielen Kathodenzerstäubungsanwendungen ist die Dicke des Films von erstrangiger Bedeutung und bedarf einer engen Steuerung. In integrierten Schaltkreisen ergibt beispielsweise ein zu dünner Film keine Sperre, und ein zu dicker Film blockiert ein Kontaktloch (via) oder ein Einschnitt (trench). In WDM-Vorrichtungen muss die Tantaloxid-Schichtdicke sehr nahe an 1/4 der Wellenlänge des hindurchgehenden Lichts liegen. Liegt die Dicke des abgeschiedenen Films nicht innerhalb des vom Konstrukteur spezifizierten Bereichs, ist die Vorrichtung nicht einsatzfähig, und die Gesamtkosten der Herstellung

bis hin zum Punkt der Testphase sind verloren, da keine Reparatur oder erneute Bearbeitung im Normalfall möglich ist.

[0006] Der wesentliche Punkt der Kathodenzerstäubungsleistung, der nur schwer zu erzielen ist, besteht in der Einheitlichkeit der Dicke des auf dem Substrat über seine Gesamtfläche erzeugten Dünnsfilms, der gewöhnlich die gleiche, aber etwas kleinere Form wie das Target aufweist. In typischer Weise verlaufen das Target und das Substrat parallel. Die Dicke des Dünnsfilms an jedem gegebenen Punkt ist das Ergebnis der Atome, die an diesem Punkt gelandet sind. Die meisten dieser Atome werden von einer Kreisfläche des Target gekommen sein, die direkt gegenüber dem gegebenen Punkt zentriert vorliegt. Die Kreisfläche auf dem Target liegt in der Größenordnung eines Radius von 1 cm. Ist die Kathodenzerstäubungsrate eines solchen Kreises die gleiche, wo auch immer der Kreis auf der Oberfläche des Targets liegt, wird ein Dünnsfilm perfekt einheitlicher Dicke abgeschieden, es sei denn, es stellen sich Merkmale der Ausrüstung oder ihres Betriebsablaufs ein, die eine Nicht-Einheitlichkeit verursachen.

[0007] Die Kathodenzerstäubungsrate eines solchen Kreises, die als die Durchschnittszahl der daraus pro Sekunde kathodenzerstäubten Atome definiert ist, ist das Integral der Zahl der Atome, die aus jedem Korn innerhalb des Kreises kathodenzerstäubt werden. Körner mit unterschiedlichen Orientierungen kathodenzerstäuben mit unterschiedlichen Raten. Wird somit ein Kreis Nr. 1 vorwiegend aus Körnern einer Orientierung A erstellt, worin A eine Langsam-Kathodenzerstäubungsorientierung darstellt, weist dieser eine langsamere Kathodenzerstäubungsrate als ein Kreis Nr. 2 auf, falls dieser Kreis Nr. 2 hauptsächlich aus Körnern einer Orientierung B erstellt ist, worin B eine Schnell-Kathodenzerstäubungsorientierung darstellt. Ist allerdings jeder Kreis aus dem gleichen Gemisch von Körnern (z.B. aus vorwiegend A oder als weiteres Beispiel aus einem konstanten Gemisch von Körnern mit Orientierung A und Körnern mit Orientierung B), verbessert sich die Kathodenzerstäubungsleistung. Daher ergibt eine einheitliche Textur eine besser gesteuerte Filmdicke, weil die Kathodenzerstäubungsrate besser vorhersagbar ist.

[0008] Gemäß US 6,331,233 von Turner wird eine einheitliche Textur über die Plattendicke hinweg von der äußeren Kante bis zum Zentrum der Platte gewährleistet. Allerdings verläuft die Spannungshistorie des Materials am Zentrum unterschiedlich zu der an der Kante. Der Unterschied tritt während "Deformationsstufe 2" auf, wenn das Material stauch-geschmiedet wird. Beim Stauch-Schmieden erlangt das Material an der Kante oder an einem hohen Radius ein gemäßigtes Spannungsniveau. Am Zentrum der Platte oder am niedrigen Radius erlangt das Material ein niedriges Spannungsniveau in der Nähe der oberen

oder unteren Oberfläche und ein hohes Spannungsniveau bei mittlerer Dicke. Sogar nach dem Glühen, Walzen und erneuten Glühen wäre zu erwarten, dass der Spannungsunterschied die Textur beeinflusst.

[0009] Sogar mit einer Kathodenzerstäubungsausrüstung gemäß dem modernsten Stand der Technik ist es unmöglich, die Dickenabweichung des dünnen Films von einem Punkt auf dem Substrat zu einem anderen mit Targets mit nicht-einheitlichen Eigenschaften zu steuern. Teilweise, aber nicht insgesamt, ist eine Steuerung der Dickenabweichung von Substrat zu Substrat und von Target zu Target bei Verwendung von Teststücken möglich. Allerdings ist die Verwendung von Teststücken zeit- und kostenaufwendig. Die Anwendung von Schmiedetechniken, wie von Stauch- und Rückschmieden, mit Umkristallisationswärmebehandlungen, die ausufernde Arbeit bedingen, wodurch allerdings die Homogenität der Mikrostruktur verbessert wird, ist gut bekannt. Jedoch sind derartige technische Vorgehensweisen anfällig, verschiedene Typen von Defekten im bearbeiteten Metall, z.B. Sprünge, Falten und Missbildungen, zu verursachen, von denen ein jeder den Anteil des bearbeiteten Metalls, welcher als Target einsetzbar wäre, herabsetzt (d.h., die Ausbeute sinkt ab). Die Neigung des Materials zum Bruch wird oft dadurch herabgesetzt, dass es auf eine Temperatur von 500°F (260°C) bis 600°F (316°C) für die Schmiedeabläufe erhitzt wird, wobei aber eine derartige Erhitzungsstufe teuer ist, das Werkstück schwerer handhabbar macht (so dass seine Endform weiter entfernt von der gewünschten Form ist) und zu einem Anstieg des Sauerstoffgehalts, insbesondere nahe der Oberfläche, führen kann. Auch ergeben weitere Schmiedetechniken (jene, die ganz allgemein als Stauch-Stabschmieden bekannt sind) Erzeugnisse mit einer Textur, das, obwohl axi-symmetrisch, beim Radius vom Zentrum zur Kante abweicht. Die Anwendung von Pulver-Metallurgietechniken zur Erzielung einer einheitlichen Textur ist ebenfalls bekannt. Allerdings sind diese Techniken generell nicht bevorzugt, weil damit höhere Kosten verbunden sind und konsolidierte Pulverteile Leerstellen und nicht-metallische Einschlüsse enthalten können, die beide für das Kathodenzerstäubungsleistungsvermögen unerwünscht sind.

[0010] Für die Zwecke der Erfindung wird die Textur als einheitlich beschrieben, wenn sich die Textur einer Fläche eines Gegenstands nicht messbar von derjenigen einer weiteren Fläche des Gegenstands unterscheidet, mit der Ausnahme von Erwartungen aus der statistischen Theorie. Die einheitliche Textur hängt nicht von der Größe des Gegenstands oder der Größe der Fläche ab.

[0011] Es ist daher eine Aufgabe der vorliegenden Erfindung, ein Kathodenzerstäubungstarget, mit dem die Voraussagbarkeit der Dicke der erzeugten Filme

verbessert ist, bereitzustellen und somit die Leichtigkeit des Einsatzes der Targets zu verbessern.

[0012] Eine weitere Aufgabe der Erfindung ist es, Klassen von Tantal- und Niob-Erzeugnissen gesteigerter mikrostruktureller Einheitlichkeit bereitzustellen und Verfahren zur Herstellung derselben anzugeben.

[0013] Noch eine Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist es, ein Kathodenzerstäubungstarget bereitzustellen, das aus einer gegebenen Masse eines Tantal-Ingot hergestellt wird, um somit die Kosteneffizienz des Verfahrens zu verbessern.

[0014] Die vorliegende Erfindung umfasst ein Verfahren zur Bildung von Kathodenzerstäubungstargets und weiterer Plattenerzeugnisse aus Ingots von Refraktärmetallen erforderlicher Reinheit, wobei das Ingot zu Stücken kurzer Länge geschnitten und die Stücke entlang abwechselnder im Wesentlichen orthogonaler Bearbeitungsachsen unter Druck bearbeitet werden. zwischenglühstufen werden nach Notwendigkeit angewandt, um eine einheitliche Textur über das Target hinweg, einschließlich des Zentrums, zu erstellen. Die einheitliche Textur ist ein konstantes Gemisch von Körnern mit der Orientierung {100} und {111}, worin diese Zahlensätze die Miller-Indices des Satzes einer kristallografischen Ebene bezeichnen, die parallel oder nahezu parallel zur kathodenzerstäubten Oberfläche verläuft. Das konstante Gemisch der Kornorientierung verbessert dadurch das Kathodenzerstäubungsleistungsvermögen durch Erstellung einer besser voraussagbaren Kathodenzerstäubungsrate zur Steuerung der Filmdicke.

[0015] Die Erfindung betrifft eine Refraktärmetallplatte, umfassend eine Dickenausdehnung, ein Zentrum und eine Kante, wobei das Metall aus der Gruppe aus Tantal und Niob ausgewählt und eine Reinheit von mindestens 99,99 % aufweist, die Platte eine Korngröße von weniger als ca. 40 µm und eine Textur aufweist, die sowohl durch die genannte Dicke hindurch als auch vom genannten Zentrum zur genannten Kante einheitlich ist, und worin ferner die genannte Refraktärmetallplatte aufweist:

- i) ein konstantes Gemisch von Körnern mit Orientierung {100}- und {111}-Kristallografieorientierungen,
- ii) eine Verteilung der {100}- und {111}-Kristallografieorientierungen, die um weniger als 30 % über die Oberfläche einer Ebene der genannten Refraktärmetallplatte abweicht, wobei die genannten Ebenen aus Ebenen, die senkrecht zur Dicke der genannten Refraktärmetallplatte verlaufen, und aus Ebenen ausgewählt sind, die diagonal zur Dicke der genannten Metallplatte verlaufen, sowie
- iii) eine Verteilung der {100}- und {111}-Kristallografieorientierungen, die um weniger als 30 %

über jede Dicke der genannten Refraktärmetallplatte abweicht.

[0016] Die Refraktärmetallplatte ist mit einem Verfahren erhältlich, wobei geschmiedet, gewalzt und gegläht wird.

[0017] Spezifischer, umfasst die Refraktärmetallplatte gemäß der Erfindung ein Metall, das aus der Gruppe, bestehend aus Tantal, Tantallegierungen, Niob und aus Nioblegierungen, ausgewählt ist und eine Reinheit von vorzugsweise mindestens 99,999 % aufweist. Bevorzugte Kathodenzerstäubungstargets umfassen die Refraktärmetallplatte gemäß der Erfindung; die Erfindung betrifft somit auch die Verwendung der Refraktärmetallplatte gemäß der Erfindung als Kathodenzerstäubungstarget.

[0018] Außerdem wird durch die vorliegende Erfindung ein Verfahren angegeben und zur Verfügung gestellt, womit ein Refraktärmetallmaterial hoher Reinheit erzeugt wird, das eine einzigartige Kombination aus feiner Kornstruktur und einheitlicher Textur aufweist.

[0019] Die Erfindung betrifft somit auch das Verfahren zur Erzeugung von Refraktärmetallplatten, worin das Metall aus der Gruppe aus Tantal, Tantallegierungen, Niob und aus Nioblegierungen ausgewählt ist und eine Reinheit von mindestens 99,99 % mit feiner metallurgischer Struktur und einheitlicher Textur aufweist, wobei das Verfahren umfasst:

- a) Bereitstellen eines Refraktärmetall-Ausgangsstücks;
- b) Absenken der Länge des Refraktärmetall-Ausgangsstücks zur Bildung eines ersten Werkstücks durch Schmieden des Blocks auf eine gewünschte Blockdicke mit ca. 35 bis 50 %iger Absenkung [erstes Schmieden 14];
- c) Umkristallisationsglühen des ersten Werkstücks bei einer ersten Temperatur von mindestens 1.370°C;
- d) zweites Absenken des Durchmessers des ersten Werkstücks (Zug-Rückschmieden) auf einen im Wesentlichen gleichen Durchmesser wie den des Refraktärmetall-Ausgangsstücks zur Bildung eines zweiten Werkstücks;
- e) Umkristallisationsglühen des zweiten Werkstücks bei einer zweiten Temperatur von mindestens 875°C;
- f) Wiederholen der Stufen b) bis e) gemäß Notwendigkeit zur Erstellung einer gewünschten Kornstruktur und Textureinheitlichkeit;
- g) drittes Absenken des zweiten Werkstücks auf eine erste Dicke zur Bildung einer ersten Platte;
- h) viertes Absenken der ersten Dicke der ersten Platte durch Querwalzen auf eine zweite Dicke zur Bildung einer zweiten Platte; und
- i) Umkristallisationsglühen der zweiten Platte bei einer Temperatur von mindestens 875°C.

[0020] Im Verfahren gemäß der Erfindung können die Stufen b) bis g) mindestens 1 Mal wiederholt werden.

[0021] Im Verfahren gemäß der Erfindung wird der Metallblock vorzugsweise bei einer Temperatur unterhalb der Minimaltemperatur der Umkristallisation des genannten Blocks geschmiedet. Im Verfahren gemäß der Erfindung umfasst der Metallblock vorzugsweise ein Metall, das aus der Gruppe ausgewählt ist, die aus Tantal, Tantallegierungen, Niob und aus Nioblegierungen besteht, wobei das genannte Metall vorzugsweise eine Reinheit von mindestens 99,999 % aufweist.

[0022] Die Erfindung betrifft auch die Verwendung der mit dem Verfahren gemäß der Erfindung hergestellten Refraktärmetallplatte als Kathodenzerstäubungstarget.

[0023] Der Erfindungsgegenstand ist auf Platten oder flache oder gekrümmte Formen (einschließlich von Walzerzeugnissen zu zylindrischen oder halbkreisförmigen oder gebogenen oder konischen Formen) anwendbar. Die Platten können in vorteilhafter Weise wegen ihrer Mikrostrukturen und Korneinheitlichkeit als Kathodenzerstäubungs-, Ofenteile, Raumfahrt- und Motorteile, als Erzeugnisse von Behältern und Stücken für hoch korrosive chemische Umgebungen eingesetzt werden. Die Platten können undurchbrochen oder mit Bohrungen versehen oder als expandierte Mesh-Erzeugnisse (mit Schlitzen und an den Kanten gezogen) vorliegen und eingesetzt werden.

[0024] Weitere Gegenstände, Merkmale und Vorteile erschließen sich aus der nun folgenden detaillierten Beschreibung bevorzugter Ausführungsformen zusammen mit den beigefügten Zeichnungen, in denen das Folgende dargestellt ist:

Kurze Beschreibung der Zeichnungen

[0025] [Fig. 1](#) ist ein Fließschema des Verfahrens der vorliegenden Erfindung;

[0026] [Fig. 2](#) ist eine Fotografie eines Tantal-Target, das gemäß dem Verfahren der [Fig. 1](#) hergestellt wurde;

[0027] [Fig. 3](#) und [Fig. 4](#) sind ähnliche Fotos von verwendeten Tantal-Targets, die mit einem grobkörnigen oder mit Banden behafteten Texturmaterial hergestellt wurden;

[0028] [Fig. 5](#) ist eine vergrößerte Fotografie (400 µm Maßstab), die die Kornorientierung in Abbildungsmikroskopschüssen eines Teilquerschnitts eines Target veranschaulicht, worin die Orientierung jedes Korn relativ zur Normalrichtung gemäß der vorlie-

genden Erfindung dargestellt ist;

[0029] **Fig. 6** ist eine vergrößerte Fotografie (400 µm Maßstab), die die Kornorientierung in Abbildungsmikroskopschüssen eines Teilquerschnitts eines Target veranschaulicht, worin die Orientierung jedes Korn relativ zur Innenebenenrichtung gemäß der vorliegenden Erfindung dargestellt ist;

[0030] **Fig. 7** ist eine vergrößerte Fotografie (500 µm Maßstab), die die Kornorientierung in Abbildungsmikroskopschüssen eines Teilquerschnitts eines Target veranschaulicht, worin die Orientierung jedes Korn relativ zur Normalrichtung gemäß dem Stand der Technik dargestellt ist;

[0031] **Fig. 8** ist eine Fotografie, die eine Makro-geätzte Oberfläche einer gemäß einem bekannten Stand der Technik gebildeten Platte mit ihrer Nicht-Einheitlichkeit der Oberflächen-Textur veranschaulicht; und

[0032] **Fig. 9** ist eine Fotografie, die eine Makro-geätzte Oberfläche einer gemäß der vorliegenden Erfindung gebildeten Platte mit ihrer Einheitlichkeit der Oberflächen-Textur veranschaulicht.

Detaillierte Beschreibung bevorzugter Ausführungsformen

[0033] Was nun **Fig. 1** betrifft, startet die Praxis einer bevorzugten Ausführungsform der vorliegenden Erfindung (Verfahrensstufen **10**) mit einem (nicht dargestellten) Refraktärmetall-Ingots **11**, bevorzugt mit einem Tantal-Ingots, das in typischer Weise einen Durchmesser von ca. 20 cm (8") und eine sehr hohe Reinheit, vorzugsweise von 99,999 % aufweist, wobei sich der Gehalt an Verunreinigungen bereits für eine Endanwendung eignet. Nach maschineller Reinigung der Oberfläche des Ingots wird dieses zu anfänglichen Werkstücken **12** auf Längen mit dem 1,5-bis 3-Fachen ihres Durchmessers oder auf ungefähr 30 bis 60 cm (12 bis 24 inches) geschnitten. Im ersten Schmiedevorgang (Stufe **14**) wird jedes anfängliche Werkstück **12** entlang seiner Längsachse um 35 bis 50 % zur Bildung eines ersten geschmiedeten Werkstücks **16** verkürzt. Das erste geschmiedete Werkstück **16** wird dann bei 1.370°C im Vakuum oder in Inertgas geglüht (Stufe **18**), um eine Umkristallisation zur Erzeugung einer zweiten Werkstücksform **20** zu verursachen. Der zweite Schmiedevorgang (Stufe **22**) wird dann durchgeführt, um die zweite Werkstücksform **20** in der Längsachse im Wesentlichen zurück auf ungefähr den Durchmesser des anfänglichen Werkstücks **12** in einem Bereich von 80 bis 120 % des Durchmessers des anfänglichen Werkstücks **12** zu schmieden. Die zweite Werkstücksform **20** wird auf ihre Seiten gelegt, und es werden flache oder gekrümmte Matrizen, wie Gesenkschmiede-Matrizen ("swaging dies"), eingesetzt, um im zweiten Schmiede-

devorgang (Stufe **22**) unter Zugspannung die zweite Werkstücksform **20** zur Bildung einer dritten Werkstücksform **24** rückzuschmieden. Dies erfolgt unter hinreichend großer Krafteinwirkung, um die Ursprungsform des anfänglichen Werkstücks **12** im Wesentlichen zurückzugewinnen. Die zweite Werkstücksform **20** wird zwischen den Schmiedezyklen zur ebenen Kaltbearbeitung hin- und herbewegt, um einen konstanten Spannungszustand durch das Stück hindurch zu induzieren. Alle Schmiedevorgänge werden bei Raumtemperatur durchgeführt, wobei natürliche Erwärmungen der Werkstücke zugelassen sind. Allerdings ist es bevorzugt, dass die Werkstücke 800°F (ca. 400°C) nicht übersteigen. Alle Schmiedevorgänge werden vorzugsweise auf einer Presse, eher als mit einem Hammer, durchgeführt, um die Spannungsrate zu verringern und eine bessere Steuerung der Werkstücksform zu ermöglichen. Die dritte Werkstücksform **24** wird bei mindestens 875°C für Tantal und seine Legierungen im Vakuum oder in Inertgas geglüht (Stufe **26**), um zu einer vierten Werkstücksform **28** umzukristallisieren. Der Stauch-Schmiede-Rück-Zyklus (Stufen **14** und **22**) können so oft wie nötig wiederholt werden, um die einheitliche Textur der Platte zu implementieren.

[0034] Gegebenenfalls zur Raffinierung der Mikrostruktur oder nötigenfalls zur Vermeidung von Sprüngen oder Brüchen oder übermäßiger Pressbelastungen können weitere zusätzliche Glühbehandlungen bei niedrigerer Temperatur wie von 1.065°C an jedem Punkt während des Schmiedeverfahrens angewandt und durchgeführt werden.

[0035] In einem dritten Schmiedevorgang (Stufe **30**), vorzugsweise durch seitliches Schmieden, wird die vierte Werkstücksform **28** verflacht, um Stabplatten **32** mit vorzugsweise einer Dicke von ungefähr 10 cm (4") zu bilden. Die Stabplatte wird quergewalzt (Stufe **34**), um ihre Dicke in typischer Weise auf ca. 0,6 bis ca. 1,2 cm (0,25 bis 0,5 inches) zur Bildung der Platte **36** zu verkürzen. Das Querwalzen (Stufe **34**) wird so angeordnet und durchgeführt, dass eine annähernd gleichmäßige Spannungsbelastung in zwei senkrechten Richtungen angelegt und ausgeübt wird. Im Anschluss an die Querwalzstufe wird die Platte **36** bei relativ niedriger Temperatur von 875 bis 1.065°C geglüht (Stufe **38**), um die Platte **40** mit ihrer voll-umkristallisierten Feinkornstruktur und ihrer einheitlichen Textur zu bilden. Anschließend wird die Komponentenform **42** aus der Platte geschnitten und an eine Stützplatte gebunden, die in eine Kathodenzerstäubungsausrüstung zur Anwendung als Kathodenzerstäubungstarget eingebaut wird.

[0036] In einer Ausführungsform der Erfindung gelangen vorzugsweise 2 Stauch-Schmiede-Rückstufen, die auf einer Presse durchgeführt werden, sowie 1 Extra-Glühzyklus nach dem zweiten Stauch-Schmiede-Rückzyklus vor der Verflachung

zu einer Bramme zur Anwendung.

[0037] Die Effekte und Vorteile der Erzeugnisse und Verfahren der vorliegenden Erfindung werden nun noch besser anhand der folgenden nicht-einschränkenden Beispiele erläutert und dargestellt.

Beispiel 1

[0038] Dieses Beispiel veranschaulicht ein Erzeugnis, das mit einem herkömmlichen Verfahren des Standes der Technik (Seiten-Schmieden und unidirektionales Walzen eines Ingot-Abschnitts) hergestellt wurde und eine Durchschnittskorngröße von 30 µm Linearabschnitt und eine Textur mit Bildung von Banden aufwies, wie dargestellt in [Fig. 7](#).

Beispiel 2

[0039] Eine Tantalplatte mit Normdicke und annähernd 99,99 % Reinheit wurde mit einem bevorzugten Ausführungsverfahren der vorliegenden Erfindung hergestellt, wie oben beschrieben und in [Fig. 1](#) dargestellt. Ein Tantal-Ingot von ca. 20 cm (8") Durchmesser wurde zu Werkstücken mit ungefähr dem 1,5- bis 3-Fachen des Ingot-Durchmessers geschnitten. Die Werkstücke werden auf ca. 40 % ihrer Ursprungslänge stauch-geschmiedet und bei ca. 1.370°C geglüht. Als Nächstes wurden die Werkstücke unter Zugspannungseinwirkung auf ungefähr ihren Ursprungsdurchmesser von ca. 20 cm (8") rückgeschmiedet, erneut auf ca. 40 % ihrer Ursprungslänge stauch-geschmiedet, unter Zugspannungseinwirkung auf einen Durchmesser von ca. 18 cm (7,25") rückgeschmiedet und an der Atmosphäre bei ca. 1.065°C geglüht. Die Werkstücke wurden zu einer Stabplatte mit einer Dicke von ca. 10 cm (4") Seiten-geschmiedet, zu einer Platte mit einer Dicke von ca. 1,25 cm (0,500") quergewalzt und an der Atmosphäre bei ca. 1.065°C geglüht. Die entstandene Platte wies eine Durchschnittskorngröße von 30 µm Linearabschnitt und eine einheitliche Textur ohne Bildung von Banden auf, wie dargestellt in [Fig. 5](#) und [Fig. 6](#).

Beispiel 3

[0040] Dieses Beispiel betrifft eine Tantal-Platte, die mit dem gleichen Verfahren wie von Beispiel 2, aber mit einem Tantal-Ingot von 99,999 % Reinheit hergestellt war. Die entstandene Platte weist eine Durchschnittskorngröße von 35 µm Linearabschnitt auf, und die Textur ist einheitlich ohne Bildung von Banden.

Beispiel 4

[0041] Es sollte gut und erfolgreich durchführbar sein, das gleiche Verfahren wie von Beispiel 2 anzuwenden, aber mit einem Tantal-Ingot mit einer Reinheit von 99,999 % und bei einer niedrigeren End-

glühtemperatur von ca. 875°C. Die entstandene Platte würde eine Durchschnittskorngröße von 15 µm Linearabschnitt wegen der niedrigeren Glühtemperatur und den niedrigeren Verunreinigungsspiegeln aufweisen. Eine einheitliche Textur ist zu erwarten, da mit dem Verfahren des Beispiels 2 eine Textur ohne die Bildung von Banden mit im Wesentlichen dem gleichen Material belegt worden ist.

Beispiel 5

[0042] Es wäre gut und erfolgreich durchführbar, das gleiche Verfahren wie von Beispiel 2 anzuwenden, aber mit einem Tantal-Ingot von 99,999 % Reinheit und einer gewalzten Dicke von ca. 2 cm (0,800"). Die entstandene Platte würde eine Durchschnittskorngröße von 38 µm Linearabschnitt aufweisen, die Textur sollte einheitlich ohne Bildung von Banden sein, da mit der bevorzugten Ausführungsform der Erfindung eine Textureinheitlichkeit gewährleistet ist, sogar wenn die beim Walzen ausgeübte Spannungsbelastung niedriger als normal ist.

Beispiel 6

[0043] Es wäre gut und erfolgreich durchführbar, das gleiche Verfahren wie von Beispiel 2 anzuwenden, aber mit einem Niob-Ingot von 99,99 % Reinheit. Die Niob-Platte mit einer Dicke von ca. 1,25 cm (0,500") sollte eine Durchschnittskorngröße von 30 µm Linearabschnitt und eine einheitliche Textur ohne Bildung von Banden auf der Grundlage der vergleichbaren Ergebnisse des Tantal aufweisen. Die Niob-Platte sollte ähnlich wie die Tantal-Platte wegen ihrer ähnlichen physikalischen charakteristischen Eigenschaften beschaffen und anwendbar sein.

Beispiel 7

[0044] Eine alternative Ausführungsform ersetzt das Verfahren mit den Stauch-Zug-Rückschmiedabläufen durch das gut bekannte Verfahren der Gleich-Kanal-Winkel-Extrusion (Equal Channel Angular Extrusion = ECAE), siehe US 5,400,633, 5,513,512, 5,600,989 und die veröffentlichten US-Anmeldungen 2000/0 001 401, 2001/0 054 457, 2002/0 000 272 und 2002/0 007 880 von Segal et al.. Das ECAE-Verfahren schließt 4 C-Typ-Durchläufe, Glühen bei 800°C, 4 C-Typ-Durchläufe und Glühen bei 800°C mit Tantal von 99,99 % Reinheit ein. Das entstandene Erzeugnis weist eine Durchschnittskorngröße von 8 µm Linearabschnitt auf.

[0045] Die Einheitlichkeit der Mikrostruktur, z.B. Korngröße und Textur, sind in [Fig. 5](#) und [Fig. 6](#) dargestellt, um deren verbesserte Kornorientierung gegenüber dem Stand der Technik (einheitliche Muster ähnlicher statistischer Verteilung) aufzuweisen, dargestellt in [Fig. 7](#) (Inhomogenität mit nicht-statistischer Verteilung). Ein weiterer Darstellungsweg der

Einheitlichkeit beruht darauf, die Makrostruktur einer Plattenoberfläche zu untersuchen, die sich durch Ätzen in einer sauren Lösung mit Flusssäure enthüllt. Das verbesserte Verfahren ist in [Fig. 9](#) in Gegenüberstellung zu dem in [Fig. 8](#) dargestellten Verfahren des Standes der Technik veranschaulicht.

[0046] Als Ergebnis der einheitlichen Textur weist die Oberfläche des eingesetzten Kathodenzerstäubungstargets, wie dargestellt in [Fig. 2](#), ein einheitliches Aussehen im Gegensatz zum gesprenkelten Aussehen auf, das durch grobe Körner oder Quirlmuster verursacht ist, die durch eine Textur unter Bildung von Banden verursacht sind, wie dies bei gemäß dem Stand der Technik hergestellten Targets üblich ist, dargestellt in [Fig. 3](#) und [Fig. 4](#). Insbesondere ist die Textur einheitlich über die gesamte Platte und einheitlich durch die Dicke hindurch vom Zentrum der Platte zur Plattenkante mit keiner Vorzugsrichtung innerhalb der Platte, wie vorwiegend in {100} oder {111}. Die einheitliche Textur ist ein im Wesentlichen konstantes Gemisch von {100}- und {111}-Kristallografieorientierungen. Die Verteilung der {100}- und {111}-Kristallografieorientierungen in einer gegebenen Ebene der Platte (orthogonal oder diagonal zur Dicke) weicht lediglich um weniger als 30 % quer zur Oberfläche dieser Ebene ab, und die Abweichung quer zur Dicke macht lediglich weniger als 30 % aus. Platten einer Dicke von weniger als ca. 1,25 cm (0,5") liegen vorwiegend in {111} und Platten einer Dicke von mindestens ca. 1,25 cm (0,5") liegen vorwiegend in {100} vor. Außerdem veranschaulicht [Fig. 2](#) das grobkörnige Material, das mit den Verfahren des Standes der Technik in Zusammenhang steht.

[0047] Auch ist die einheitliche Textur mit einer feinen Korngröße kombiniert, und zwar in typischer Weise mit ASTM 7 bis 8.8 bei Messung gemäß Testmethode ASTM E112. Durch die vorliegende Erfindung werden Platten bis zu einer Dicke von mindestens ca. 2 cm (8") mit diesen wünschenswerten Eigenschaften bereitgestellt. Im Stand der Technik verschlechterten sich die Einheitlichkeit der Textur und der Korngröße sowie der Feingrad des Kornes bei einer Dicke von mehr als ca. 1,25 cm (0,5").

[0048] Die Einführung einer ersten Zwischenglühstufe nach dem ersten Stauch-Schmiedevorgang führt zu einer stark abgesenkten Neigung des Materials zu Brüchen in den anschließenden Metallbearbeitungsabläufen. Sie beseitigt auch die Notwendigkeit zur Erwärmung des Materials für anschließende Schmiedevorgänge.

[0049] Der jeweilige Bezug auf Tantal und Niob schließt deren Legierungen, einschließlich Tantal-Niob-Legierungen sowie weiterer jeweiliger Legierungen, und auch Lamine und auch weitere Komposite der jeweiligen Metalle mit weiteren Materialien ein. Die Erfindung lässt sich auch auf Formen und Ver-

wendungen dieser Metalle und deren Derivate (wie deren Oxide) sowie auf Verfahren zu deren Herstellung anwenden. Die Verwendungen der Platten oder weiterer Formen der Metalle schließen Kathodenzerstäubungstarget-Anwendungen ein, können aber auch Direktanwendungen der Platten für chemische, medizinische, elektrische und Hochtemperaturbeständige Anwendungen (Ofenteile, Raumfahrtplatten, Turbinenblätter) einschließen.

Patentansprüche

1. Refraktärmetallplatte, umfassend eine Dickerstreckung, ein Zentrum und eine Kante, wobei das Metall aus der Gruppe, bestehend aus Tantal und Niob, ausgewählt ist, das genannte Metall eine Reinheit von mindestens 99,99 % und die Platte eine Korngröße von weniger als ca. 40 µm und eine Textur aufweist, das einheitlich sowohl durch die genannte Dicke hindurch als auch vom genannten Zentrum zur genannten Kante ist, und worin ferner die genannte Refraktärmetallplatte aufweist:

i) ein konstantes Gemisch von Körnern mit {100}- und {111}-Orientierung der kristallografischen Orientierungen,
 ii) eine Verteilung der {100}- und {111}-kristallografischen Orientierungen, die lediglich um weniger als 30 % über die Oberfläche jeder Ebene der genannten Refraktärmetallplatte abweicht, wobei die genannten Ebenen aus Ebenen, die orthogonal zur Dicke der genannten Refraktärmetallplatte verlaufen, und aus Ebenen ausgewählt sind, die diagonal zur Dicke der genannten Refraktärmetallplatte verlaufen, und
 iii) eine Verteilung der {100}- und {111}-kristallografischen Orientierungen, die um lediglich weniger als 30 % über jede Dicke der genannten Refraktärmetallplatte abweicht.

2. Refraktärmetallplatte gemäß Anspruch 1, worin die genannte Refraktärmetallplatte mit einem Verfahren erhalten wurde, das Schmieden, Walzen und Glühen umfasst.

3. Refraktärmetallplatte gemäß Anspruch 1, worin der Metallblock ein Metall umfasst, das aus der Gruppe, bestehend aus Tantal, Tantallegierungen, Niob und aus Nioblegierungen, ausgewählt ist, wobei das genannte Metall eine Reinheit von mindestens 99,999 % aufweist.

4. Kathodenzerstäubungstarget, umfassend eine Platte gemäß einem der Ansprüche 1 bis 3.

5. Verfahren zur Erzeugung einer Refraktärmetallplatte, worin das Metall ein Metall umfasst, das aus der Gruppe, bestehend aus Tantal, Tantallegierungen, Niob und aus Nioblegierungen, ausgewählt ist, wobei das genannte Metall eine Reinheit von mindestens 99,99 % mit metallurgischer Feinstruktur und einheitlicher Textur aufweist, umfassend:

- a) Bereitstellen eines Refraktärmetall-Ausgangsstücks;
- b) erstes Absenken der Länge des Refraktärmetall-Ausgangsstücks zur Bildung eines ersten Werkstücks durch Schmieden des Blocks auf eine gewünschte Blockdicke mit einer Absenkung um ca. 35 bis 50 % [erstes Schmieden];
- c) Umkristallisationsglühen des ersten Werkstücks bei einer Temperatur von mindestens 1.370°C;
- d) zweites Absenken des Durchmessers des ersten Werkstücks (Zug-Rückschmieden) auf einen im Wesentlichen gleichen Durchmesser wie den des Refraktärmetall-Ausgangsstücks zur Bildung eines zweiten Werkstücks;
- e) Umkristallisationsglühen des zweiten Werkstücks bei einer zweiten Temperatur von mindestens 875°C;
- f) Wiederholen der Stufen b) bis e) gemäß Notwendigkeit der Erstellung der gewünschten Kornstruktur und Textureinheitlichkeit;
- g) drittes Absenken des zweiten Werkstücks auf eine erste Dicke zur Bildung einer ersten Platte;
- h) viertes Absenken der ersten Dicke der ersten Platte durch Querwalzen auf eine zweite Dicke zur Bildung einer zweiten Platte; und
- i) Umkristallisationsglühen der zweiten Platte bei einer Temperatur von mindestens 875°C.

6. Verfahren gemäß Anspruch 5, worin die Stufen b) bis g) mindestens 1 Mal wiederholt werden.

7. Verfahren gemäß Anspruch 5, worin der Metallblock bei einer Temperatur unterhalb der Minimaltemperatur der Umkristallisation des genannten Blocks geschmiedet wird.

8. Verfahren gemäß Anspruch 5, worin der Metallblock ein Metall umfasst, das aus der Gruppe, bestehend aus Tantal, Tantallegierungen, Niob und aus Nioblegierungen, ausgewählt ist, wobei das genannte Metall eine Reinheit von mindestens 99,999 % aufweist.

9. Verwendung der mit dem Verfahren gemäß einem der Ansprüche 5 bis 8 hergestellten Metallplatte als Kathodenzerstäubungstarget.

Es folgen 6 Blatt Zeichnungen

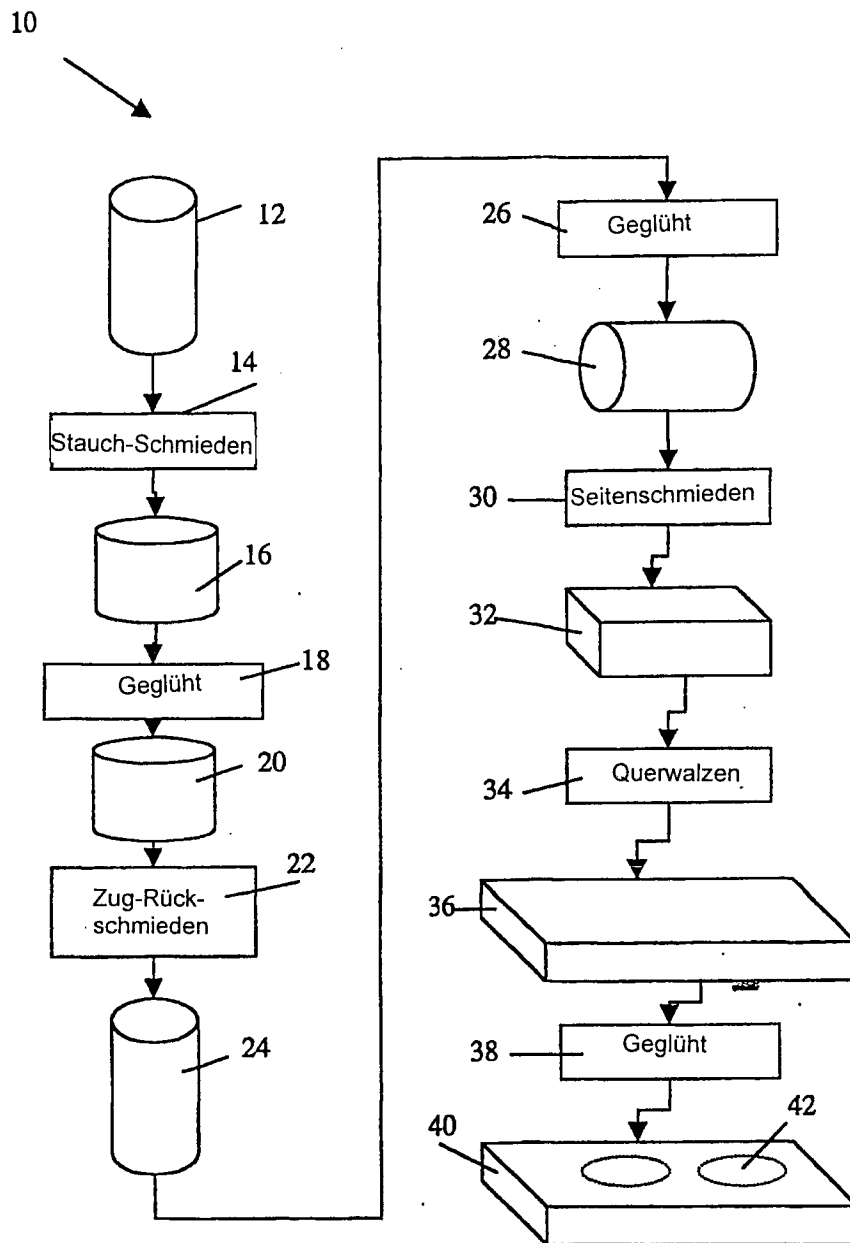


FIG. 1

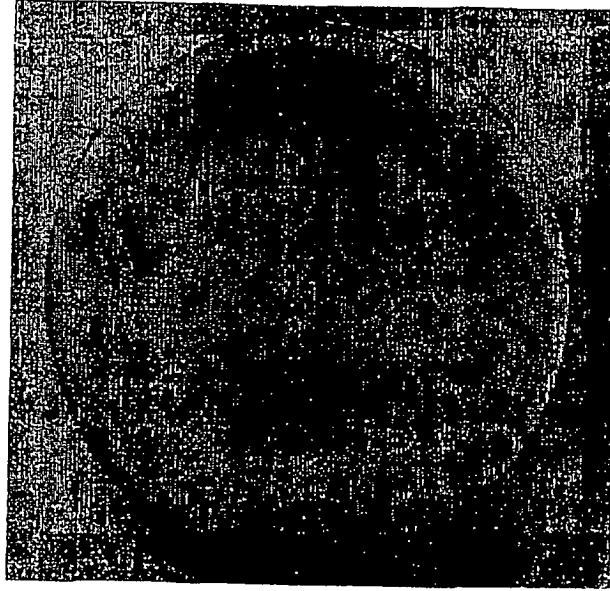


FIG. 2

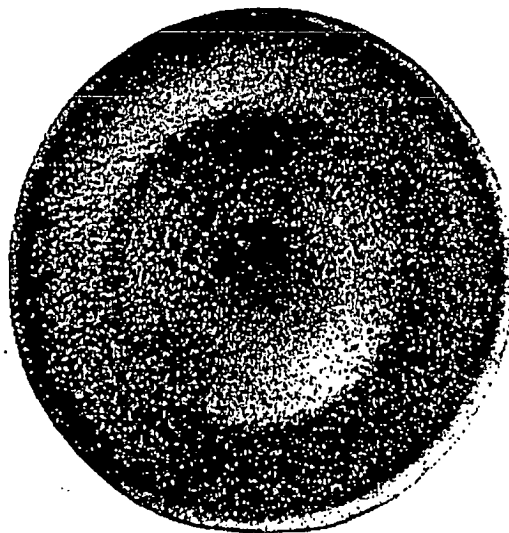


FIG. 3

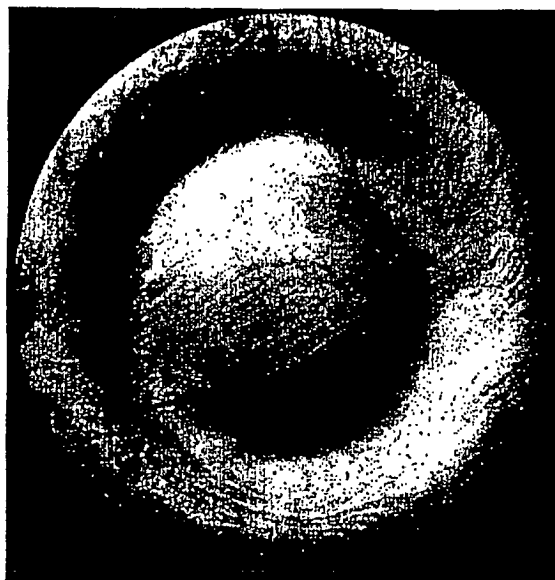


FIG. 4



FIG. 5

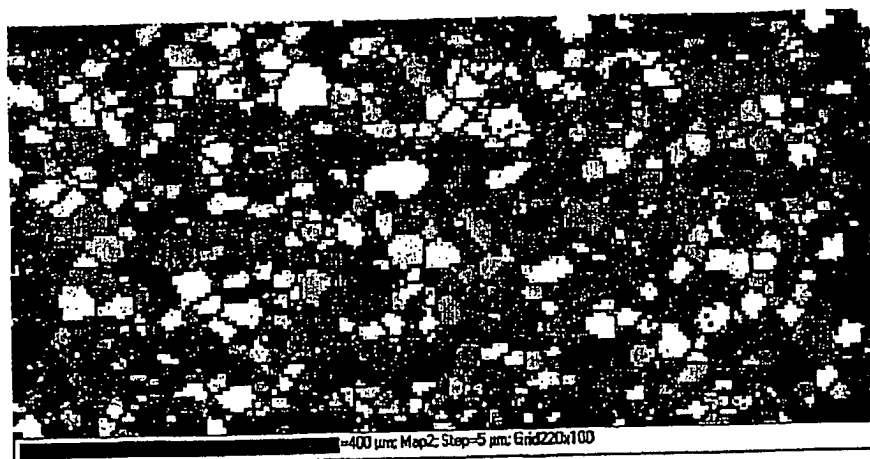


FIG. 6

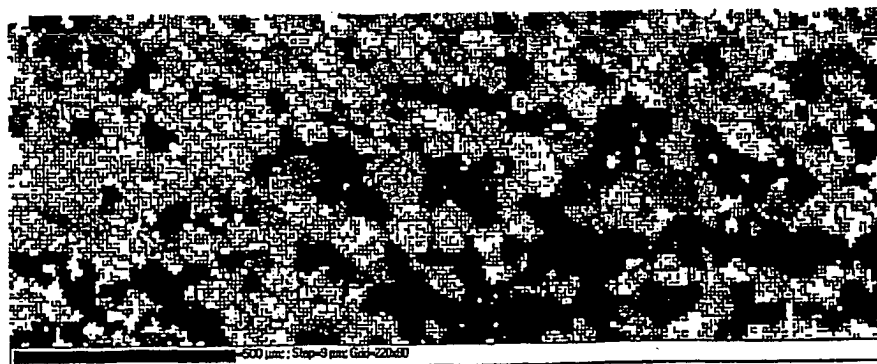


FIG. 7

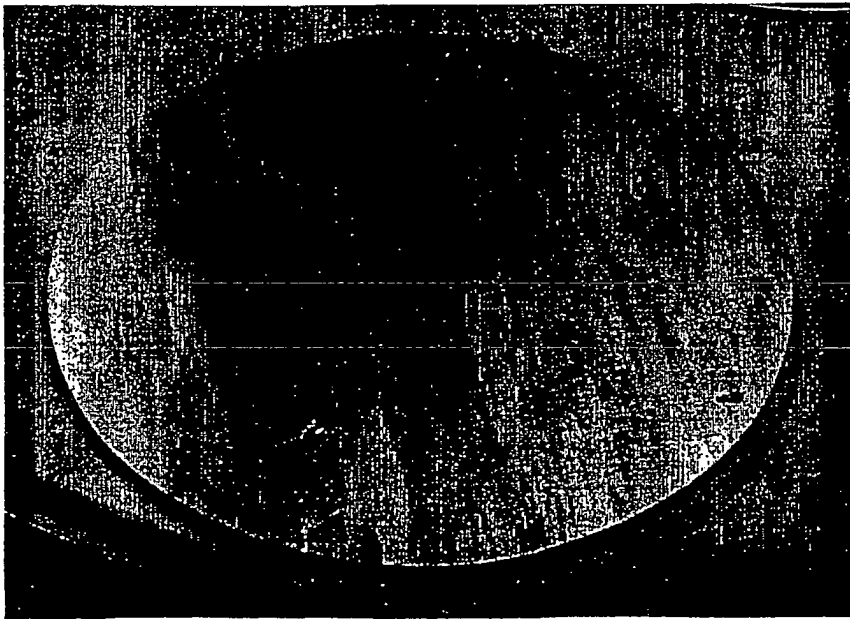


FIG. 8

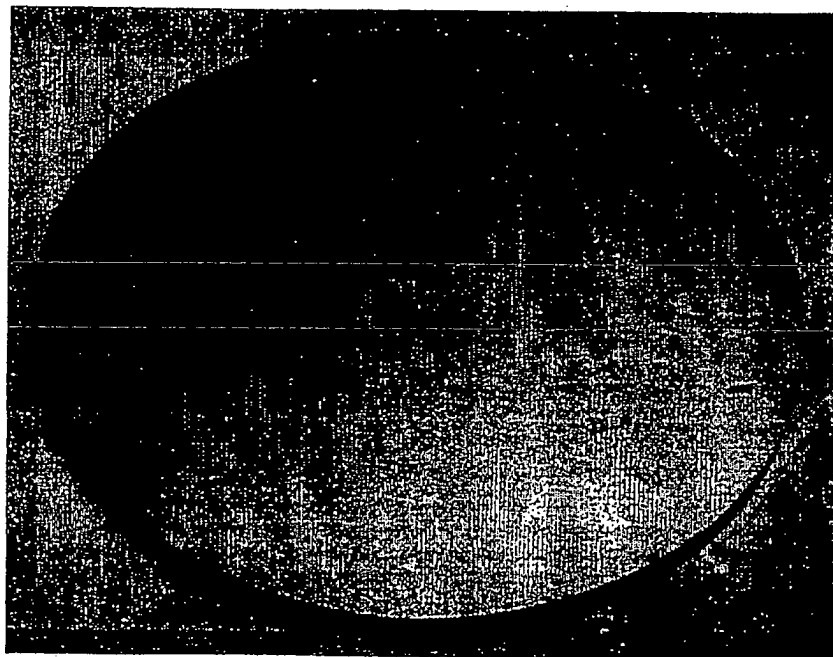


FIG. 9