

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局(43) 国際公開日
2007年8月23日 (23.08.2007)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2007/094449 A1(51) 国際特許分類:
C23C 14/34 (2006.01) H05B 33/14 (2006.01)
C09K 11/64 (2006.01)(74) 代理人: 志賀 正武, 外 (SHIGA, Masatake et al.); 〒
1048453 東京都中央区八重洲 2 丁目 3 番 1 号 Tokyo
(JP).

(21) 国際出願番号: PCT/JP2007/052835

(22) 国際出願日: 2007年2月16日 (16.02.2007)

(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2006-040338 2006年2月17日 (17.02.2006) 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, AT, AU, AZ, BA, BB, BG,
BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK,
DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT,
HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KM, KN, KP, KR,
KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, LY, MA, MD, MG,
MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM,
PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL,
SM, SV, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ,
VC, VN, ZA, ZM, ZW.(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 三菱マ
テリアル株式会社 (MITSUBISHI MATERIALS COR-
PORATION) [JP/JP]; 〒1008117 東京都千代田区大手
町一丁目 5 番 1 号 Tokyo (JP).

(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 張 守斌 (ZHANG,
Shoubin) [CN/JP]; 〒6691339 兵庫県三田市テクノパ
ーク 1 2 - 6 三菱マテリアル株式会社 三田工場内
Hyogo (JP). 小見山 昌三 (KOMIYAMA, Shozo) [JP/JP];
〒6691339 兵庫県三田市テクノパーク 1 2 - 6 三菱
マテリアル株式会社 三田工場内 Hyogo (JP). 三島 昭
史 (MISHIMA, Akifumi) [JP/JP]; 〒6691339 兵庫県三
田市テクノパーク 1 2 - 6 三菱マテリアル株式会
社 三田工場内 Hyogo (JP).(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, LS, MW, MZ, NA, SD,
SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY,
KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG,
CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE,
IS, IT, LT, LU, LV, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR),
OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML,
MR, NE, SN, TD, TG).添付公開書類:
— 国際調査報告書2 文字コード及び他の略語については、定期発行される
各 PCT ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語
のガイダンスノート」を参照。(54) Title: HIGH-STRENGTH SPUTTERING TARGET FOR FORMING FLUORESCENT-MATERIAL FILM IN ELECTRO-
LUMINESCENT ELEMENT

(54) 発明の名称: エレクトロルミネッセンス素子における蛍光体膜形成用高強度スパッタリングターゲット

(57) Abstract: A high-strength sputtering target for forming a fluorescent-material film in an electroluminescent element, the tar-
get having a composition comprising 20-50 mass% Al, 1-10 mass% Eu, and 0.5-20 mass% Mg, with the remainder being Ba and
unavoidable impurities. It has a structure which comprises an intermetallic compound phase constituted of Mg and Al and an in-
termetallic compound phase constituted of Ba and Al and containing Eu in solution. The Mg-Al intermetallic compound phase
comprises an Al₃Mg₂ intermetallic compound, an Al₁₂Mg₁₇ intermetallic compound, and an AlMg intermetallic compound, while
the Ba-Al intermetallic compound phase containing Eu in solution comprises a BaAl₄ intermetallic compound phase containing Eu
in solution in the Ba in the intermetallic compound and a Ba₇Al₁₃ intermetallic compound phase containing Eu in solution in the Ba
in the intermetallic compound.(57) 要約: エレクトロルミネッセンス素子における蛍光体膜形成用高強度スパッタリングターゲットであって、
Al : 20 ~ 50 質量%、Eu : 1 ~ 10 質量%、Mg : 0.5 ~ 20 質量% を含有し、残部が Ba および不可避
不純物からなる成分組成を有し、Mg と Al の金属間化合物相および Eu が固溶した Ba と Al の金属間化合物相
からなる組織を有し、前記 Mg と Al の金属間化合物相は、Al₃Mg₂ 金属間化合物、Al₁₂Mg₁₇ 金属間化合物
および AlMg 金属間化合物とからなり、前記 Eu が固溶した Ba と Al の金属間化合物相は、BaAl₄ 金属間
化合物における Ba に Eu が固溶している金属間化合物相および Ba₇Al₁₃ 金属間化合物における Ba に Eu が
固溶している金属間化合物相からなる。

WO 2007/094449 A1

明 細 書

エレクトロルミネッセンス素子における蛍光体膜形成用高強度スパッタリングターゲット

技術分野

[0001] 本発明は、各種電子機器、情報機器のディスプレイなどに使用されるエレクトロルミネッセンス素子を構成する蛍光体膜をスパッタリングにより形成するためのスパッタリングターゲットに関する。特にユーロピウム添加マグネシウム・バリウムチオアルミネート蛍光体膜($\text{Mg}_x\text{Ba}_{1-x}\text{Al}_2\text{S}_4:\text{Eu}$ 、ただし $x=0.1\sim0.9$)を H_2S ガスを含む雰囲気中で行う反応性スパッタリング法により形成するためのスパッタリングターゲットであり、大気中に長時間放置しても高強度を維持することができるエレクトロルミネッセンス素子における蛍光体膜形成用スパッタリングターゲットに関する。

本願は、2006年02月17日に日本に出願された特願2006-40338号に基づく優先権を主張し、その内容をここに援用する。

背景技術

[0002] 近年、各種電子機器、情報機器のディスプレイなどにエレクトロルミネッセンス素子が使用されるようになり、このエレクトロルミネッセンス素子には蛍光体膜が使用されている。エレクトロルミネッセンス素子は、一般にガラス基板の上に下部透明電極を形成し、この下部透明電極の上に第一絶縁膜を形成し、この第一絶縁膜の上に蛍光体膜を形成し、この蛍光体膜の上に蛍光体膜が第二絶縁膜および第一絶縁膜に包まれるように第二絶縁膜を形成し、この第二絶縁膜の上に上部電極を形成した構造を有しており、この構造は広く知られている。

[0003] このエレクトロルミネッセンス素子に使用される蛍光体膜の一つとして、ユーロピウム添加マグネシウム・バリウムチオアルミネート蛍光体膜($\text{Mg}_x\text{Ba}_{1-x}\text{Al}_2\text{S}_4:\text{Eu}$ 、ただし $x=0.1\sim0.9$)が知られている。このユーロピウム添加バリウムチオアルミネート蛍光体膜は、母体成分がマグネシウム・バリウムチオアルミネート($\text{Mg}_x\text{Ba}_{1-x}\text{Al}_2\text{S}_4$ 、ただし $x=0.1\sim0.9$)からなり、発光中心となる不純物がユーロピウム(Eu)からなるもので、このユーロピウム添加マグネシウム・バリウムチオアルミネート蛍光体膜は、Mg

Sペレットと Al_2S_3 ペレットと EuS_3 とを添加したBaSペレットを蒸発源として二元パルス電子ビーム蒸着法によって最初にアモルファス相の薄膜を作製し、その後アニール炉により熱処理を行うことで結晶化させることにより作製している(特許文献1参照)。さらに、ユーロピウム添加マグネシウム・バリウムチオアルミネート蛍光体膜($\text{Mg}_x\text{Ba}_{1-x}\text{Al}_2\text{S}_4:\text{Eu}$ 、ただし $x=0.1\sim0.9$)は、一般に、エレクトロルミネッセンス素子における蛍光体膜を多元スパッタリング法により形成することは知られている(特許文献2参照)。

特許文献1:米国特許6,919,682号明細書

特許文献2:特開2001—118677号公報

発明の開示

発明が解決しようとする課題

[0004] 近年、ディスプレイはますます大型化し、したがってこの大型のディスプレイに使用するエレクトロルミネッセンス素子もますます大型化しているが、前記蒸着方法で広い面積のユーロピウム添加バリウムチオアルミネート蛍光体膜を製造するには限界があり、一層広い面積の薄膜を形成するには蒸着法よりもスパッタリング法で形成する方が有利であるところから、近年、大型のエレクトロルミネッセンス素子に使用する広い面積のユーロピウム添加マグネシウム・バリウムチオアルミネート蛍光体膜を多元スパッタリング法により製造する研究がなされている。

[0005] しかし、多元スパッタリング法でユーロピウム添加マグネシウム・バリウムチオアルミネート蛍光体膜を製造とすると、Mg、Ba、AlおよびEuの各元素を同時にスパッタさせるためにMg、Ba、AlおよびEuの各元素のターゲットをスパッタリング装置に共にセットする必要から、スパッタリング装置を大型化しなければならず、また、BaおよびEuはオイル中に保存しなければ酸化を防ぐことはできないほど活性な金属であり、BaおよびEuは大気中に放置すると即座に酸化するためにBaおよびEuターゲットを大気中で扱うことは非常に困難であった。

[0006] さらにMg、Ba、AlおよびEuの各元素のターゲットを用いて多元スパッタリングを行っても成分組成にずれが生じることなくユーロピウム添加マグネシウム・バリウムチオアルミネート蛍光体膜($\text{Mg}_x\text{Ba}_{1-x}\text{Al}_2\text{S}_4:\text{Eu}$ 、ただし $x=0.1\sim0.9$)に成形すること

は困難であることから、Mg、Ba、AlおよびEuの各要素粉末を膜特性から定めたAl: 20～50質量%、Eu: 1～10質量%、Mg: 0.5～20質量%を含有し、残部がBaからなる組成となるように配合し混合して混合粉末を作製し、この混合粉末をプレス成形し、真空中で焼結またはホットプレスすることによりターゲットを作製し、このターゲットを用いて硫化水素雰囲気中でスパッタすることによりユーロピウム添加バリウムチオールミネート蛍光体膜($\text{BaAl}_2\text{S}_4:\text{Eu}$)を形成することが考えられる。

[0007] しかし、Mg、Ba、AlおよびEuの各要素粉末をAl: 20～50質量%、Eu: 1～10質量%、Mg: 0.5～20質量%を含有し、残部がBaからなる組成となるように配合し混合し、プレス成形したのち真空中で焼結またはホットプレスすることにより得られたターゲットは、酸化し易いBa粉末およびEu粉末が素地中に金属状態で残存するために、このターゲットを大気中に放置すると短時間で酸化し、従って、作製したターゲットをスパッタリング装置にセットしてスパッタリングを開始するまでの間にターゲットが酸化し、ターゲットの強度が極端に低下してスパッタリング用ターゲットとしては使用できなくなるという問題点があった。

[0008] 本発明は、大気中に長時間放置しても高強度を維持することができるエレクトロルミネッセンス素子における蛍光体膜形成用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ものである。

課題を解決するための手段

[0009] 本発明者らは、大気中に長時間放置しても高強度を維持することができるエレクトロルミネッセンス素子における蛍光体膜形成用スパッタリングターゲットを開発すべく研究を行った。その結果、以下の(A)から(C)のことを初めて知見した。

(A)原料として、Al-Mg合金、 BaAl_4 金属間化合物、金属Baおよび金属Eu、さらに必要に応じて金属Alを用意し、これら原料を真空溶解し鑄造してAl: 20～50質量%、Eu: 1～10質量%、Mg: 0.5～20質量%を含有し、残部がBaおよび不可避不純物からなる組成を有するインゴットを作製し、このインゴットを粉砕して合金粉末にし、この合金粉末を真空中で焼結またはホットプレスして得られたターゲットは、MgとAlの金属間化合物相およびEuが固溶したBaとAlの金属間化合物相からなり、EuがBaに固溶していることからターゲットを大気中に放置しても短時間で酸化すること

はなく、したがって、このターゲットを大気中に長時間放置しても強度を維持することができることがわかった。

(B) 前記MgとAlの金属間化合物相は、 Al_3Mg_2 金属間化合物と、 $\text{Al}_{12}\text{Mg}_{17}$ 金属間化合物と、AlMg金属間化合物とからなり、

前記Euが固溶したBaとAlの金属間化合物相は、 BaAl_4 金属間化合物のBaにEuが固溶している金属間化合物および $\text{Ba}_7\text{Al}_{13}$ 金属間化合物のBaにEuが固溶している金属間化合物相から構成されていることがわかった。

(C) 素地中に単体Mg相が存在するとスパッタ中に異常放電が発生し易くなるので素地中に単体Mg相が存在しないことが好ましく、さらに単体Ba相および単体Eu相が残存すると酸化し易くなり、ターゲットの強度が低下するので素地中に単体Ba相および単体Eu相が残存しないことが好ましい、などの研究結果が得られたのである。

[0010] この発明は、かかる研究結果に基づいて成されたものであって、

(1) Al:20～50質量%、Eu:1～10質量%、Mg:0.5～20質量%を含有し、残部がBaおよび不可避不純物からなる組成、並びにMgとAlの金属間化合物相およびEuが固溶したBaとAlの金属間化合物相からなる組織を有するエレクトロルミネッセンス素子における蛍光体膜形成用高強度スパッタリングターゲットである。

(2) 前記MgとAlの金属間化合物相は、 Al_3Mg_2 金属間化合物、 $\text{Al}_{12}\text{Mg}_{17}$ 金属間化合物およびAlMg金属間化合物とからなり、

前記Euが固溶したBaとAlの金属間化合物相は、 BaAl_4 金属間化合物におけるBaにEuが固溶している金属間化合物および $\text{Ba}_7\text{Al}_{13}$ 金属間化合物におけるBaにEuが固溶している金属間化合物からなる前記(1)記載のエレクトロルミネッセンス素子における蛍光体膜形成用高強度スパッタリングターゲットであることが好ましい。

[0011] 本発明者らは、さらに研究を行った。その結果、

この発明のエレクトロルミネッセンス素子における蛍光体膜を形成するための高強度スパッタリングターゲットは、素地中に単体Mg相、単体Ba相および単体Eu相が分散していることは好ましくないが、単体Al相が分散していてもAlは急激に酸化することはないので強度を低下させることはなく、素地中に単体Al相が均一に分散することによりかえって靱性が向上し、ターゲットの切削時にチッピングが発生することがない、

という研究結果が得られたのである。

[0012] したがって、この発明は、

(3) Al: 20～50質量%、Eu: 1～10質量%、Mg: 0.5～20質量%を含有し、残部がBaおよび不可避不純物からなる組成を有し、MgとAlの金属間化合物相、Euが固溶したBaとAlの金属間化合物相および単体Al相からなる組織を有するエレクトロルミネッセンス素子における蛍光体膜形成用高強度スパッタリングターゲットである。

(4) 前記MgとAlの金属間化合物相は、 Al_3Mg_2 金属間化合物、 $\text{Al}_{12}\text{Mg}_{17}$ 金属間化合物およびAlMg金属間化合物からなり、

前記Euが固溶したBaとAlの金属間化合物相は、 BaAl_4 金属間化合物におけるBaにEuが固溶している金属間化合物および $\text{Ba}_7\text{Al}_{13}$ 金属間化合物におけるBaにEuが固溶している金属間化合物からなる前記(3)記載のエレクトロルミネッセンス素子における蛍光体膜形成用高強度スパッタリングターゲットであることが好ましい。

発明の効果

[0013] 本発明のターゲットは、MgとAlの金属間化合物相およびEuが固溶したBaとAlの金属間化合物相からなる組織を有しているので、ターゲットを大気中に放置しても短時間で酸化することはない、したがって、このターゲットを大気中に長時間放置しても強度を維持することができる。

この発明のスパッタリングターゲットを用いて H_2S を含む雰囲気中でスパッタリングすることにより、従来と比べて広い面積のエレクトロルミネッセンス素子における蛍光体膜を高スピードで製造することができ、その製造コストも下がるのでディスプレイ産業の発展に大いに貢献し得るものである。

また、上記組織は単体Al相を有していてもよく、素地中に上記単体Al相が分散していてもAlは急激に酸化することがないので強度を低下させることはなく、素地中に単体Al相が均一に分散することによりかえって靱性が向上し、ターゲットの切削時にチッピングが発生することがない。

発明を実施するための最良の形態

[0014] 以下、本発明を詳細に説明する。

本発明の第一の実施形態のエレクトロルミネッセンス素子における蛍光体膜形成用

高強度スパッタリングターゲットは、Al:20～50質量%、Eu:1～10質量%、Mg:0.5～20質量%を含有し、残部がBaおよび不可避不純物からなる組成を有し、MgとAlの金属間化合物相およびEuが固溶したBaとAlの金属間化合物相からなる組織を有する(第一の実施形態の蛍光体膜形成用高強度スパッタリングターゲットと呼ぶこともある)。

上記第一の実施形態の蛍光体膜形成用高強度スパッタリングターゲットにおいて、上記MgとAlの金属間化合物相は、 Al_3Mg_2 金属間化合物、 $\text{Al}_{12}\text{Mg}_{17}$ 金属間化合物およびAlMg金属間化合物とからなることが好ましく、上記Euが固溶したBaとAlの金属間化合物相は、 BaAl_4 金属間化合物におけるBaにEuが固溶している金属間化合物および $\text{Ba}_7\text{Al}_{13}$ 金属間化合物におけるBaにEuが固溶している金属間化合物からなることが好ましい(このようなスパッタリングターゲットを、第二の実施形態の蛍光体膜形成用高強度スパッタリングターゲットと呼ぶこともある。)

[0015] 本発明の第三の実施形態のエレクトロルミネッセンス素子における蛍光体膜形成用高強度スパッタリングターゲットは、Al:20～50質量%、Eu:1～10質量%、Mg:0.5～20質量%を含有し、残部がBaおよび不可避不純物からなる組成を有し、MgとAlの金属間化合物相と、Euが固溶したBaとAlの金属間化合物相と、単体Al相からなる組織を有する(第三の実施形態の蛍光体膜形成用高強度スパッタリングターゲットと呼ぶこともある)。

また、上記第三の実施形態の蛍光体膜形成用高強度スパッタリングターゲットにおいて、上記MgとAlの金属間化合物相は、 Al_3Mg_2 金属間化合物、 $\text{Al}_{12}\text{Mg}_{17}$ 金属間化合物およびAlMg金属間化合物とからなることが好ましく、上記Euが固溶したBaとAlの金属間化合物相は、 BaAl_4 金属間化合物におけるBaにEuが固溶している金属間化合物および $\text{Ba}_7\text{Al}_{13}$ 金属間化合物におけるBaにEuが固溶している金属間化合物からなることが好ましい(このようなスパッタリングターゲットを、第四の実施形態の蛍光体膜形成用高強度スパッタリングターゲットと呼ぶこともある。)

[0016] 上記第一～第二の実施形態の蛍光体膜形成用高強度スパッタリングターゲットを製造するには、例えば、以下のようにして製造することができる。

まず、原料として、Al-Mg合金、 BaAl_4 金属間化合物、金属Baおよび金属Euを用

意し、これら原料をアルミナ製ルツボに装入し、アルゴンガス雰囲気中で高周波真空溶解炉により溶解し、得られた溶湯を金型に鑄込んでインゴットを作製する。ついで、得られたインゴットを高純度アルゴンガスブロー内で粉碎して粒径が $500\mu\text{m}$ 以下の粉末を作製し、この粉末を温度： $350\sim 800^{\circ}\text{C}$ 、圧力： $10\sim 50\text{MPa}$ にて $1\sim 8$ 時間保持する条件のホットプレスを行うことによりホットプレス体を作製する。ついで、このホットプレス体を切削加工することにより、エレクトロルミネッセンス素子における蛍光体膜形成用スパッタリングターゲットを作製することができる。

[0017] また、上記第三～第四の実施形態の蛍光体膜形成用高強度スパッタリングターゲットを製造するには、例えば、以下のようにして製造することができる。

まず、原料として金属Al、Al-Mg合金、 BaAl_4 金属間化合物、金属Baおよび金属Euを用意し、これら原料をアルミナ製ルツボに装入し、アルゴンガス雰囲気中で高周波真空溶解炉により溶解し、得られた溶湯を金型に鑄込んでインゴットを作製する。ついで、得られたインゴットを高純度アルゴンガスブロー内で粉碎して粒径が $500\mu\text{m}$ 以下の粉末を作製し、この粉末を温度： $350\sim 800^{\circ}\text{C}$ 、圧力： $10\sim 50\text{MPa}$ にて $1\sim 8$ 時間保持する条件のホットプレスを行うことによりホットプレス体を作製する。ついで、このホットプレス体を切削加工することにより、エレクトロルミネッセンス素子における蛍光体膜形成用スパッタリングターゲットを作製することができる。

[0018] この発明のエレクトロルミネッセンス素子における蛍光体膜形成用高強度スパッタリングターゲットの成分組成をAl:20～50質量%、Eu:1～10質量%、Mg:0.5～20質量%を含有し、残部がBaおよび不可避不純物からなる成分組成にしなければならないことは、ユーロピウム添加マグネシウム・バリウムチオアルミネート蛍光体膜($\text{Mg}_x\text{Ba}_{1-x}\text{Al}_2\text{S}_4$:Eu、ただし $x=0.1\sim 0.9$)を形成するために計算で導き出される範囲であり、すでに知られている成分組成であるからその限定理由の説明は省略する。

[0019] なお、前記原料として入手できる金属Baは純度が高いほど好ましいが、一般に工業原料として入手できる金属Baには不可避不純物としてアルカリ土類金属、主にSr, Ca, Mgが含まれている。したがって、この発明のエレクトロルミネッセンス素子における蛍光体膜形成用高強度スパッタリングターゲットにおいてもこれらアルカリ土類金属、主にSr, Ca, Mgが不可避不純物として含まれており、不可避不純物としてSr:2

質量%以下、Ca:1質量%以下、Mg:0.5質量%以下を含むエレクトロルミネッセンス素子における蛍光体膜形成用高強度スパッタリングターゲットもこの発明のエレクトロルミネッセンス素子における蛍光体膜形成用高強度スパッタリングターゲットに含まれる。

[0020] また、Euは非常に易酸化元素であるため、単体Eu相がターゲット組織中に分散していることは好ましくなく、BaとAlの金属間化合物に固溶されていることが好ましいが、本発明の蛍光体膜形成用高強度スパッタリングターゲットの組織にはEuとAlの金属間化合物の状態で存在又は固溶されたものが含まれていてもよい。

[0021] 本発明の蛍光体膜形成用高強度スパッタリングターゲットは、MgとAlの金属間化合物相およびEuが固溶したBaとAlの金属間化合物相からなる組織を有しているので、ターゲットを大気中に放置しても短時間で酸化することはない、したがって、このターゲットを大気中に長時間放置しても強度を維持することができる。

本発明のスパッタリングターゲットを用いて H_2S を含む雰囲気中でスパッタリングすることにより、従来と比べて広い面積のエレクトロルミネッセンス素子における蛍光体膜を高スピードで製造することができ、その製造コストも下がるのでディスプレイ産業の発展に大いに貢献し得るものである。

また、上記組織は単体Al相を有していてもよく、素地中に上記単体Al相が分散していてもAlは急激に酸化することがないので強度を低下させることはなく、素地中に単体Al相が均一に分散することによりかえって靱性が向上し、ターゲットの切削時にチッピングが発生することがない。

実施例

[0022] (実施例1)

原料として、Al-Mg合金、 $BaAl_4$ 金属間化合物、金属Baおよび金属Euを用意し、これら原料をアルミナ製ルツボに装入し、アルゴンガス雰囲気中、温度:1200℃で高周波真空溶解炉により溶解し、得られた溶湯を金型に鋳込んでインゴットを作製した。ついで、得られたインゴットを高純度アルゴンガスブロー内で粉砕して平均粒径:70 μm の粉末を作製し、この粉末を温度:400℃、圧力:40MPaにて2時間保持する条件のホットプレスを行うことにより、直径:125mm、厚さ:5mmの寸法を有し、表1

に示される成分組成を有する本発明の実施例のホットプレス体ターゲット1～5および比較例のホットプレス体ターゲット1～3を作製した。そして、これら本発明の実施例のホットプレス体ターゲット1～5および比較例のホットプレス体ターゲット1～3からブロックを切り出してX線回折を行い、ピーク強度の検出結果を表1に示した。

[0023] 次に、これらホットプレス体ターゲットから切り出して幅:4mm、長さ:40mm、厚さ:3mmの寸法を有する抗折試験片を作製した。この抗折試験片を12時間大気中に放置した後、JIS R-1601に規定される方法により三点曲げ試験を行い、抗折強度を求め、その結果を表1に示した。

[0024] さらに、本発明の実施例のホットプレス体ターゲット1～5および比較例のホットプレス体ターゲット1～3をスパッタリング装置に取り付け、一方、基板として石英ガラス(縦:18mm、横:12mm、厚さ:1.2mm)をターゲットに対向するようにスパッタリング装置に取り付け、雰囲気:Ar(圧力:0.13Pa)で、出力:280W(直流)の条件でスパッタリングを実施し、10分間のスパッタリング中に発生した異常放電発生の回数を測定し、その結果を表1に示した。

[0025] (従来例)

原料として、Mg粉末、Al粉末、Ba粉末およびEu粉末を用意し、これら原料粉末を温度:400℃、圧力:40MPaにて2時間保持する条件のホットプレスを行うことにより表1に示される成分組成を有する従来例のホットプレス体ターゲット1～5を作製し、これら従来例のホットプレス体ターゲット1～5からブロックを切り出してX線回折を行い、ピーク強度の検出結果を表1に示した。

[0026] 次に、これらホットプレス体ターゲットから切り出して幅:4mm、長さ:40mm、厚さ:3mmの寸法を有する抗折試験片を作製した。この抗折試験片を12時間大気中に放置した後、JIS R-1601に規定される方法により三点曲げ試験を行い、抗折強度を求め、その結果を表1に示した。

[0027] さらに、従来例のホットプレス体ターゲット1～5をスパッタリング装置にセットし、Ar雰囲気中、上記実施例1と同じ条件でスパッタリングすることにより異常放電発生の回数を測定し、その結果を表1に示した。

[0028] [表1]

ホットプレス体 ターゲット	成分組成(質量%)				X線回折によるピーク強度の検出結果						12時間経過後 のターゲット 抗折強度 (MPa)	スパッタ中の 異常放電 回数(回)	
	Al	Eu	Mg	Baおよび 不可避 不純物	MgとAl の金属間 化合物相	Euが固溶したBa とAlの金属間 化合物相	単体 Mg相	単体 Al相	単体 Eu相	単体 Ba相			
本発明の実施例	1	40	1	10	残部	有り	有り	無し	無し	無し	無し	32	0
	2	40	2	17	残部	有り	有り	無し	無し	無し	無し	36	0
	3	36.5	3.5	17	残部	有り	有り	無し	無し	無し	無し	30	0
	4	34	4	10	残部	有り	有り	無し	無し	無し	無し	29	0
	5	31	5	5	残部	有り	有り	無し	無し	無し	無し	28	0
比較例	1	40	30	5	残部	有り	有り	無し	無し	有り*	無し	16	0
	2	20	1	5	残部	有り	有り	無し	無し	無し	有り*	8	0
	3	10	20	5	残部	有り	有り	無し	無し	有り*	有り*	9	0
従来例	1	本発明の実施例1と同じ				無し	無し	有り*	有り	有り*	有り*	5	43
	2	本発明の実施例2と同じ				無し	無し	有り*	有り	有り*	有り*	4	57
	3	本発明の実施例3と同じ				無し	無し	有り*	有り	有り*	有り*	4	57
	4	本発明の実施例4と同じ				無し	無し	有り*	有り	有り*	有り*	3	14
	5	本発明の実施例5と同じ				無し	無し	有り*	有り	有り*	有り*	2	6

*印は、この発明の範囲から外れた条件を示す。

[0029] 表1に示される結果から、

(a) 本発明の実施例のホットプレス体ターゲット1～5は、 Al_3Mg_2 金属間化合物、 Al_3Mg_2 金属間化合物および AlMg 金属間化合物のピークが検出されることから、 Al_3Mg_2 金属間化合物と $\text{Al}_{12}\text{Mg}_{17}$ 金属間化合物と AlMg 金属間化合物からなるMgとAlの金属間化合物相が存在することがわかる。さらに BaAl_4 金属間化合物および Ba_7Al

1₁₃ 金属間化合物のピークが検出され、単体Mg相、単体Al相、単体Ba相および単体Eu相のピークは検出されないことから、本発明の実施例のホットプレス体ターゲット1～5の組織は、BaAl₄ 金属間化合物相とBa₇Al₁₃ 金属間化合物相を有し、EuはBaに固溶した状態で含まれていることがわかる。このような本発明の実施例のホットプレス体ターゲット1～5は、大気中に12時間放置しても高強度を維持することができ、さらにスパッタリング中の異常放電発生回数も少ないことがわかる。

(b) 比較例のホットプレス体ターゲット1～3は、BaAl₄ 金属間化合物相およびBa₇Al₁₃ 金属間化合物相が検出され、さらに単体Ba相および／または単体Eu相のピークが検出されることがわかる。このような比較例のホットプレス体ターゲット1～3は、12時間放置すると強度が低下することがわかる。

(c) Mg粉末、Al粉末、Ba粉末およびEu粉末などの要素金属粉末をホットプレスして得られた従来例のホットプレス体ターゲット1～5は、その成分組成がそれぞれ本発明の実施例のホットプレス体ターゲット1～5と同じであっても、Al₃Mg₂ 金属間化合物とAl₁₂Mg₁₇ 金属間化合物とAlMg金属間化合物からなるMgとAlの金属間化合物相、EuがBaに固溶したBaAl₄ 金属間化合物およびEuがBaに固溶したBa₇Al₁₃ 金属間化合物からなるEuが固溶したBaとAlの金属間化合物相のピークは検出されていないが、単体Mg相、単体Al相、単体Ba相および単体Eu相の全てのピークが検出されることがわかる。このような従来例のホットプレス体ターゲット1～5は、大気中に12時間放置すると、その強度が極度に低下し、スパッタリングに際して異常放電発生回数が多くパーティクル発生数が多い、などが解る。

[0030] (実施例2)

原料として、Al-Mg合金、BaAl₄ 金属間化合物、金属Al、金属Baおよび金属Euを用意し、これら原料をアルミナ製ルツボに装入し、アルゴンガス雰囲気中、温度:1200℃で高周波真空溶解炉により溶解し、得られた溶湯を金型に鋳込んでインゴットを作製した。ついで、得られたインゴットを高純度アルゴンガスブロー内で粉砕して平均粒径:70 μmの粉末を作製し、この粉末と平均粒径:100 μmのAl粉末を混合し、得られた混合粉末を温度:400℃、圧力:40MPaにて2時間保持する条件のホットプレスを行うことにより表2に示される成分組成を有する本発明の実施例のホットプレス

体ターゲット6～10を作製した。ついで、これら本発明の実施例のホットプレス体ターゲット6～10からブロックを切り出してX線回折を行い、ピーク強度の検出結果を表2に示した。

[0031] 次に、これらホットプレス体ターゲットから切り出して幅:4mm、長さ:40mm、厚さ:3mmの寸法を有する抗折試験片を作製した。この抗折試験片を12時間大気中に放置した後、JIS R-1601に規定される方法により三点曲げ試験を行い、抗折強度を求め、その結果を表2に示した。

[0032] さらに、本発明の実施例のホットプレス体ターゲット6～10を、実施例1よりも2.5倍深い切り込み深さ:0.5mm、送りスピード:40m/分、回転数:540回転/分、インバータ:20Hzの条件でフライス盤を使って乾式切削加工を行うことにより幅:200mm、長さ:350mm、厚さ:10mmの寸法を有し、表2に示される成分組成を有する本発明の実施例のターゲット6～10を作製し、切削表面に発生する直径1mm以上の大きなチッピングの数を測定し、その結果を表2に示した。

[0033] さらに、本発明の実施例のホットプレス体ターゲット6～10をスパッタリング装置にセットし、Ar雰囲気中、実施例1と同じ条件でスパッタリングすることにより異常放電発生の回数を測定し、その結果を表2に示した。

[0034] [表2]

ホットプレス体 ターゲット	成分組成(質量%)				X線回折によるピーク強度の検出結果					12時間解過後 のターゲット 抗折強度 (MPa)	直径1mm以上 のチップング の数(個)	スパッタ中の 異常放電回数 (回)
	Al	Eu	Mg	Baおよび 不可避 不純物	MgとAl の金属間 化合物相	Euが固溶したBa とAlの金属間 化合物相	単体 Mg相	単体 Al相	単体 Eu相	単体 Ba相		
6	40	1	10	残部	有り	有り	無し	有り	無し	無し	0	0
7	40	2	17	残部	有り	有り	無し	有り	無し	無し	0	0
8	36.5	3.5	17	残部	有り	有り	無し	有り	無し	無し	0	0
9	34	4	10	残部	有り	有り	無し	有り	無し	無し	0	0
10	31	5	5	残部	有り	有り	無し	有り	無し	無し	0	0
本発明の実施例												

[0035] 表2に示される結果から、本発明の実施例のホットプレス体ターゲット6～10は、 Al_3Mg_2 金属間化合物、 $\text{Al}_{12}\text{Mg}_{17}$ 金属間化合物および AlMg 金属間化合物からなるMgとAlの金属間化合物相が存在し、さらにEuがBaに固溶した BaAl_4 金属間化合物およびEuがBaに固溶した $\text{Ba}_7\text{Al}_{13}$ 金属間化合物からなるEuがBaに固溶したBaとAlの金属間化合物相が存在し、さらに単体Al相が存在し、一方、単体Mg相、単体Ba

相および単体Eu相のピークは検出されないことがわかる。このような本発明の実施例のホットプレス体ターゲット6～10は、大気中に12時間放置しても高強度を維持することができ、さらに単体Al相が存在することにより切削性が向上して苛酷な条件の切削を行ってもチッピングの発生がないこと、さらに異常放電回数が表1の従来例のホットプレス体ターゲット1～5に比べて少ないことなどがわかる。

以上、本発明の好ましい実施例を説明したが、本発明はこれら実施例に限定されることはない。本発明の趣旨を逸脱しない範囲で、構成の付加、省略、置換、およびその他の変更が可能である。本発明は前述した説明によって限定されることはなく、添付のクレームの範囲によってのみ限定される。

産業上の利用可能性

- [0036] 本発明のエレクトロルミネッセンス素子における蛍光体膜形成用スパッタリングターゲットは、大気中に長時間放置しても高強度を維持することができる。本発明のスパッタリングターゲットを用いて H_2S を含む雰囲気中でスパッタリングすることにより従来と比べて広い面積のエレクトロルミネッセンス素子における蛍光体膜を高スピードで製造することができ、その製造コストも下がるのでディスプレイ産業の発展に大いに貢献し得る。

請求の範囲

- [1] Al:20～50質量%、Eu:1～10質量%、Mg:0.5～20質量%を含有し、残部がBaおよび不可避不純物からなる組成を有し、MgとAlの金属間化合物相およびEuが固溶したBaとAlの金属間化合物相からなる組織を有するエレクトロルミネッセンス素子における蛍光体膜形成用高強度スパッタリングターゲット。
- [2] 前記MgとAlの金属間化合物相は、 Al_3Mg_2 金属間化合物、 $\text{Al}_{12}\text{Mg}_{17}$ 金属間化合物およびAlMg金属間化合物とからなり、
前記Euが固溶したBaとAlの金属間化合物相は、 BaAl_4 金属間化合物におけるBaにEuが固溶している金属間化合物および $\text{Ba}_7\text{Al}_{13}$ 金属間化合物におけるBaにEuが固溶している金属間化合物からなる請求項1記載のエレクトロルミネッセンス素子における蛍光体膜形成用高強度スパッタリングターゲット。
- [3] Al:20～50質量%、Eu:1～10質量%、Mg:0.5～20質量%を含有し、残部がBaおよび不可避不純物からなる組成を有し、MgとAlの金属間化合物相、Euが固溶したBaとAlの金属間化合物相および単体Al相からなる組織を有するエレクトロルミネッセンス素子における蛍光体膜形成用高強度スパッタリングターゲット。
- [4] 前記MgとAlの金属間化合物相は、 Al_3Mg_2 金属間化合物、 $\text{Al}_{12}\text{Mg}_{17}$ 金属間化合物およびAlMg金属間化合物とからなり、
前記Euが固溶したBaとAlの金属間化合物相は、 BaAl_4 金属間化合物におけるBaにEuが固溶している金属間化合物および $\text{Ba}_7\text{Al}_{13}$ 金属間化合物におけるBaにEuが固溶している金属間化合物からなる請求項3記載のエレクトロルミネッセンス素子における蛍光体膜形成用高強度スパッタリングターゲット。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2007/052835

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C23C14/34(2006.01)i, C09K11/64(2006.01)i, H05B33/14(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)

C23C14/00-14/58, C09K11/64, H05B33/14

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	1996-2007
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2007	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2007

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

JST7580(JDream2), JSTPlus(JDream2),
Science Citation Index Expanded (Web of Science)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2004-533095 A (Ifire Technology Inc.), 28 October, 2004 (28.10.04), Claims; Par. Nos. [0033], [0035] & US 6447654 B1 & WO 2002/097155 A1 & EP 1392881 A1 & AU 2002302224 A1 & KR 2004030632 A	1-4
A	JP 2004-273219 A (TDK Corp.), 30 September, 2004 (30.09.04), Full text & WO 2004/080128 A1 & US 2006/0254462 A1	1-4
A	JP 2005-538516 A (Ifire Technology Inc.), 15 December, 2005 (15.12.05), Full text & WO 2004/026000 A1 & EP 1554913 A1 & AU 2003266071 A1 & US 2005/0249971 A1	1-4

☒ 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
09 April, 2007 (09.04.07)

Date of mailing of the international search report
01 May, 2007 (01.05.07)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2007/052835

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	MIURA, N. et al. 'High-Luminance Blue-Emitting BaAl ₂ S ₄ :Eu Thin-Film Electroluminescent Devices' Jpn. J. Appl. Phys. 15 November 1999, Vol. 38, pp. L1291-1292, ISSN: 0021-4922	1-4

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, C09K11/64(2006.01)i, H05B33/14(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. C23C14/00-14/58, C09K11/64, H05B33/14

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	1971-2007年
日本国実用新案登録公報	1996-2007年
日本国登録実用新案公報	1994-2007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)

JST7580(JDream2), JSTPlus(JDream2), Science Citation Index Expanded (Web of Science)

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 請求の範囲の番号
A	JP 2004-533095 A (アイファイア テクノロジー インコーポレー ティッド) 2004.10.28, 特許請求の範囲, 段落[0033], [0035] & US 6447654 B1 & WO 2002/097155 A1 & EP 1392881 A1 & AU 2002302224 A1 & KR 2004030632 A	1-4
A	JP 2004-273219 A (TDK 株式会社) 2004.09.30, 全文 & WO 2004/080128 A1 & US 2006/0254462 A1	1-4

☒ 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

09.04.2007

国際調査報告の発送日

01.05.2007

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)

小柳 健悟

4G

3774

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 請求の範囲の番号
A	JP 2005-538516 A (アイフアイア テクノロジー コーポレーション) 2005.12.15, 全文 & WO 2004/026000 A1 & EP 1554913 A1 & AU 2003266071 A1 & US 2005/0249971 A1	1-4
A	MIURA, N. et al. 'High-Luminance Blue-Emitting BaAl ₂ S ₄ :Eu Thin-Film Electroluminescent Devices' Jpn. J. Appl. Phys. 15 November 1999, Vol. 38, pp. L1291-1292, ISSN: 0021-4922	1-4