



(19)中華民國智慧財產局

(12)發明說明書公告本

(11)證書號數：TW I694980 B

(45)公告日：中華民國 109 (2020) 年 06 月 01 日

(21)申請案號：108113200

(22)申請日：中華民國 108 (2019) 年 04 月 16 日

(51)Int. Cl. : C04B35/58 (2006.01)

C04B35/64 (2006.01)

C23C14/34 (2006.01)

(30)優先權：2018/04/20 奧地利

GM 50074/2018

(71)申請人：德商攀時組成物質有限公司 (德國) PLANSEE COMPOSITE MATERIALS GMBH
(DE)

德國

(72)發明人：波爾席克 彼得 POLCIK, PETER (DE)

(74)代理人：閻啓泰；林景郁

(56)參考文獻：

TW 200925310A

TW 200951237A

審查人員：傅俊中

申請專利範圍項數：22 項 圖式數：0 共 11 頁

(54)名稱

靶材及製造靶材之方法

(57)摘要

本發明係關於一種用於物理氣相沉積之靶材，其具有以下化學組成：

- 95 mol%至 100 mol%之以下化合物中之至少二者之混合物：二硼化鉭 (TaB₂) 及/或硼化鎢 (WB₂ 及/或 W₂B₅) 及/或二硼化鉭 (TaB₂) 及硼化鎢 (WB₂ 及/或 W₂B₅) 之混合相；

- 0.01 mol%至 5 mol%之碳 (C) ；

- 尤其小於 0.01 mol%之硼化物，其為除二硼化鉭 (TaB₂) 及/或硼化鎢 (WB₂ 及/或 W₂B₅) 及/或二硼化鉭 (TaB₂) 及硼化鎢 (WB₂ 及/或 W₂B₅) 之混合相以外之硼化物，

其中，就金屬純度而言，二硼化鉭 (TaB₂) 及/或硼化鎢 (WB₂ 及/或 W₂B₅) 及/或二硼化鉭 (TaB₂) 及硼化鎢 (WB₂ 及/或 W₂B₅) 之混合相之混合物以及碳 (C) 之量之總和為至少 99.8 mol %，

並且其具有以下物理特性：

- 密度大於如上所定義之化學組成之理論密度之 90%，較佳大於如上所定義之化學組成之理論密度之 95%；

- 二硼化鉭 (TaB₂) 及/或硼化鎢 (WB₂ 及/或 W₂B₅) 及/或二硼化鉭 (TaB₂) 及硼化鎢 (WB₂ 及/或 W₂B₅) 之混合相之混合物之顆粒之平均顆粒尺寸為小於 10 微米，較佳小於 3 微米。

Target for physical vapour phase deposition having the following chemical composition:

- 95 mol% to 100 mol% of a mixture of at least two of the following compounds: tantalum diboride (TaB₂) and/or tungsten boride (WB₂ and/or W₂B₅) and/or mixed phases of tantalum diboride (TaB₂) and tungsten boride (WB₂ and/or W₂B₅)

- 0.01 mol% to 5 mol% of carbon (C)

- in particular less than 0.01 mol% of borides other than tantalum diboride (TaB_2) and/or tungsten boride (WB_2 and/or W_2B_5) and/or mixed phases of tantalum diboride (TaB_2) and tungsten boride (WB_2 and/or W_2B_5),

wherein in respect of the metallic purity the sum of the mixture of tantalum diboride (TaB_2) and/or tungsten boride (WB_2 and/or W_2B_5) and/or mixed phases of tantalum diboride (TaB_2) and tungsten boride (WB_2 and/or W_2B_5) and the carbon (C) amounts to at least 99.8 mol%,

and having the following physical properties:

- a density greater than 90%, preferably greater than 95%, of the theoretical density of the chemical composition defined above

- an average grain size of grains of the mixture of tantalum diboride (TaB_2) and/or tungsten boride (WB_2 and/or W_2B_5) and/or mixed phases of tantalum diboride (TaB_2) and tungsten boride (WB_2 and/or W_2B_5) of less than 10 micrometers, preferably less than 3 micrometers.



I694980

【發明摘要】

【中文發明名稱】 靶材及製造靶材之方法

【英文發明名稱】 Target and process for producing a target

【中文】

本發明係關於一種用於物理氣相沉積之靶材，其具有以下化學組成：

- 95 mol%至100 mol%之以下化合物中之至少二者之混合物：二硼化鉭（ TaB_2 ）及/或硼化鎢（ WB_2 及/或 W_2B_5 ）及/或二硼化鉭（ TaB_2 ）及硼化鎢（ WB_2 及/或 W_2B_5 ）之混合相；
- 0.01 mol%至5 mol%之碳（C）；
- 尤其小於0.01 mol%之硼化物，其為除二硼化鉭（ TaB_2 ）及/或硼化鎢（ WB_2 及/或 W_2B_5 ）及/或二硼化鉭（ TaB_2 ）及硼化鎢（ WB_2 及/或 W_2B_5 ）之混合相以外之硼化物，

其中，就金屬純度而言，二硼化鉭（ TaB_2 ）及/或硼化鎢（ WB_2 及/或 W_2B_5 ）及/或二硼化鉭（ TaB_2 ）及硼化鎢（ WB_2 及/或 W_2B_5 ）之混合相之混合物以及碳（C）之量之總和為至少99.8 mol%，

並且其具有以下物理特性：

- 密度大於如上所定義之化學組成之理論密度之90%，較佳大於如上所定義之化學組成之理論密度之95%；
- 二硼化鉭（ TaB_2 ）及/或硼化鎢（ WB_2 及/或 W_2B_5 ）及/或二硼化鉭（ TaB_2 ）及硼化鎢（ WB_2 及/或 W_2B_5 ）之混合相之混合物之顆粒之平均顆粒尺寸為小於10微米，較佳小於3微米。

【英文】

Target for physical vapour phase deposition having the following chemical composition:

- 95 mol% to 100 mol% of a mixture of at least two of the following compounds: tantalum diboride (TaB_2) and/or tungsten boride (WB_2 and/or W_2B_5) and/or mixed phases of tantalum diboride (TaB_2) and tungsten boride (WB_2 and/or W_2B_5)
- 0.01 mol% to 5 mol% of carbon (C)
- in particular less than 0.01 mol% of borides other than tantalum diboride (TaB_2) and/or tungsten boride (WB_2 and/or W_2B_5) and/or mixed phases of tantalum diboride (TaB_2) and tungsten boride (WB_2 and/or W_2B_5),

wherein in respect of the metallic purity the sum of the mixture of tantalum diboride (TaB_2) and/or tungsten boride (WB_2 and/or W_2B_5) and/or mixed phases of tantalum diboride (TaB_2) and tungsten boride (WB_2 and/or W_2B_5) and the carbon (C) amounts to at least 99.8 mol%,

and having the following physical properties:

- a density greater than 90%, preferably greater than 95%, of the theoretical density of the chemical composition defined above
- an average grain size of grains of the mixture of tantalum diboride (TaB_2) and/or tungsten boride (WB_2 and/or W_2B_5) and/or mixed phases of tantalum diboride (TaB_2) and tungsten boride (WB_2 and/or W_2B_5) of less than 10 micrometers, preferably less than 3 micrometers.

【指定代表圖】 無

【代表圖之符號簡單說明】

無

【特徵化學式】

無

【發明說明書】

【中文發明名稱】 靶材及製造靶材之方法

【英文發明名稱】 Target and process for producing a target

【技術領域】

【0001】 本發明係關於一種具有如請求項1前言所述之特徵之用於物理氣相沉積之靶材（塗層源）以及一種用於製造具有如請求項9所述之特徵之靶材之方法。

【先前技術】

【0002】 用於物理氣相沉積之方法廣泛地用於製造先前技術中之各式各樣之膜。由於該等膜之廣泛應用範圍，必須能夠沉積彼此非常不同的塗層材料。

【0003】 物理氣相沉積利用各種技術，諸如例如蒸發、濺射沉積或陰極電弧沉積/電弧源蒸發。

【0004】 靶材適用於PVD（physical vapour deposition；物理氣相沉積）方法，以將膜沉積至為其提供之基板材料上。在本發明之上下文中，術語「靶材」應理解為意指濺射靶材或電弧陰極。

【0005】 取決於建構材料，靶材係由不同技術所製造。原則上可能區分成粉末冶金方法及熔融冶金方法。在粉末冶金技術中，有許多不同的選項必須根據靶材關於集成元件之性質之組成而選擇。實例包括壓製、燒結、熱等靜壓（hot isostatic pressing；HIP）、鍛造、輥壓、熱壓（hot pressing；HP）或火花電漿燒結（spark plasma sintering；SPS），其亦彼此組合。

【0006】 所述類型之靶材及方法描述於WO 2008/96648 A1、

JP05195199、JP55128560及WO 2011/137472 A1中。

【0007】 尤其，JP55128560描述一種包含至少二種不同的二硼化物之燒結體之製造，其中必須使用呈硼化物形式之諸如鎳、鐵及鈷之金屬作為黏合劑及燒結助劑來補償在相對低的燒結溫度下製造之低孔隙率之缺點。該缺點為當使用燒結體作為靶材時，此等金屬會損害經沉積之膜之純度。

【0008】 亦已知藉由共濺射由二硼化鉭（ TaB_2 ）及硼化鎢（ WB_2 及/或 W_2B_5 ）製造膜，其中利用由實質上純的二硼化鉭（ TaB_2 ）及實質上純的硼化鎢（ WB_2 及/或 W_2B_5 ）所製造之特殊靶材。工業塗佈方法之缺點在於，單獨的靶材與旋轉基板之空間分離不可避免地致使多層膜而不為化學上均質膜。

【發明內容】

【0009】 本發明所解決之問題為提供一種同源靶材及一種用於製造具有高密度之靶材之同源方法，此使得可能製造高純度，化學上均質膜，並且展現精細及各向同性之微觀結構。

【0010】 該目的係藉由具有如請求項1所述之特徵之靶材以及具有如請求項9所述之特徵之方法來實現。本發明之有利的具體實例定義於附屬請求項中。亦尋求在物理氣相沉積（PVD）方法中使用根據本發明之靶材以將薄膜沉積至基板上之保護。

【0011】 由於根據本發明之用於製造靶材之方法係在相對高的溫度下進行，因此本發明避免使用黏合劑或燒結助劑，諸如例如鎳、鈷或鐵作為粉狀添加物。然而，此會不可避免地致使在此等高溫下微觀結構之粗化，此反過來又會不利於用作靶材。本發明藉由利用由至少二種不同的相所構成之粉末，即二硼化鉭（ TaB_2 ）、硼化鎢（ WB_2 及/或 W_2B_5 ），及視情況選用之碳（較佳為石墨）（若碳不在二硼化鉭（ TaB_2 ）或硼化鎢（ WB_2 及/或 W_2B_5 ）之一或二相中

以呈雜質之形式存在)來避免此種粗化。此確保儘管具有相對高的壓實溫度，仍保留精細的微觀結構。

【0012】 根據本發明，以下化合物中之至少二者之混合物：二硼化鉭 (TaB_2) 及硼化鎢 (WB_2 及/或 W_2B_5) 以及碳 (C) 之量之總和為至少99.8 mol%。此為金屬純度，沒有考慮氧 (O)、氮 (N) 或氫 (H) 等元素。

【0013】 可用於根據本發明之方法之粉末批料由以下所組成：

- 95 mol%至100 mol%之二硼化鉭 (TaB_2) 及硼化鎢 (WB_2 及/或 W_2B_5) 之混合物；
- 及視情況選用之0.01 mol%至5 mol%之碳 (C)。

【0014】 由於二硼化鉭 (TaB_2) 及/或硼化鎢 (WB_2 及/或 W_2B_5) 中之雜質，除二硼化鉭 (TaB_2) 及硼化鎢 (WB_2 及/或 W_2B_5) 以外之硼化物可在根據本發明之靶材中被檢測到 (小於0.01 mol%)。

【圖式簡單說明】

無

【實施方式】

【0015】 本發明之一個具體實例提供碳 (C) 呈石墨形式。

【0016】 對於具有35/65 mol%之 TaB_2 / W_2B_5 組成之靶材之粉末批料之混合物，例如使用以下粉末：

- TaB_2 ，其顆粒尺寸d50值為2.5 μm ；
- WB_2 及/或 W_2B_5 ，其顆粒尺寸d50值為9.4 μm ；
- 石墨粉末，其顆粒尺寸小於6 μm 。

【0017】 將粉末以 TaB_2 / W_2B_5 之比例為35/65混合。在30 MPa之壓力及

2000°C之溫度下在直徑為165 mm之模具中藉由熱壓將預先研磨之粉末混合物壓縮成尺寸為165 mm直徑 × 8 mm之墊圈（rondelles）。

【0018】 本發明之一個具體實例提供將二硼化鉭（TaB₂）及/或硼化鎢（WB₂及/或W₂B₅）及/或二硼化鉭（TaB₂）及硼化鎢（WB₂及/或W₂B₅）之混合相足夠均勻地分佈在靶材中，以確保在選擇尺寸為至少1 mm²之至少五個不同的方形或圓形測量區域時，在各情況下，在特定測量區域之表面處所測定之平均化學組成與自所有選擇之測量區域所計算之平均化學組成相差不大於20%，較佳不大於10%。

【0019】 本發明之一個具體實例提供靶材之X射線分析顯示各向同性結構而沒有偏好的結晶顆粒排列，其中二硼化鉭（TaB₂）及/或硼化鎢（WB₂及/或W₂B₅）及/或二硼化鉭（TaB₂）及硼化鎢（WB₂及/或W₂B₅）之混合相之混合物之顆粒之縱橫比為小於1.5，較佳為小於1.2，尤其較佳基本上為1。

【0020】 本發明之一個具體實例提供僅二硼化鉭（TaB₂）及/或硼化鎢（WB₂及/或W₂B₅）及/或二硼化鉭（TaB₂）及硼化鎢（WB₂及/或W₂B₅）之混合相係呈X射線可識別相之形式存在。

【0021】 本發明之一個具體實例提供靶材之HV30維氏硬度係大於1800 HV30，較佳大於2300 HV30。

【0022】 考量到該方法，本發明之一個具體實例提供熱壓或火花電漿燒結（SPS）係在至少20 MPa，較佳至少30 MPa之壓力下進行。

【0023】 考量到該方法，本發明之一個具體實例提供熱壓或火花電漿燒結（SPS）係在真空中或在惰性保護性氣體氛圍中進行。

【符號說明】

無

【發明申請專利範圍】

【第1項】一種用於物理氣相沉積之靶材，其具有以下化學組成：

95 mol%至100 mol%之以下化合物中之至少二者之混合物：二硼化鉭（ TaB_2 ）及/或硼化鎢（ WB_2 及/或 W_2B_5 ）及/或二硼化鉭（ TaB_2 ）及硼化鎢（ WB_2 及/或 W_2B_5 ）之混合相；

0.01 mol%至5 mol%之碳（C）；

尤其小於0.01 mol%之硼化物，其為除二硼化鉭（ TaB_2 ）及/或硼化鎢（ WB_2 及/或 W_2B_5 ）及/或二硼化鉭（ TaB_2 ）及硼化鎢（ WB_2 及/或 W_2B_5 ）之混合相以外之硼化物，

其中，就金屬純度而言，該二硼化鉭（ TaB_2 ）及/或硼化鎢（ WB_2 及/或 W_2B_5 ）及/或二硼化鉭（ TaB_2 ）及硼化鎢（ WB_2 及/或 W_2B_5 ）之混合相之混合物以及該碳（C）之量之總和為至少99.8 mol%，

並且其具有以下物理特性：

密度大於如上所定義之化學組成之理論密度之90%；

該二硼化鉭（ TaB_2 ）及/或硼化鎢（ WB_2 及/或 W_2B_5 ）及/或二硼化鉭（ TaB_2 ）及硼化鎢（ WB_2 及/或 W_2B_5 ）之混合相之混合物之顆粒之平均顆粒尺寸為小於10微米。

【第2項】如請求項1所述之靶材，其中密度大於如上所定義之化學組成之理論密度之95%。

【第3項】如請求項1所述之靶材，其中該二硼化鉭（ TaB_2 ）及/或硼化鎢（ WB_2 及/或 W_2B_5 ）及/或二硼化鉭（ TaB_2 ）及硼化鎢（ WB_2 及/或 W_2B_5 ）之混合相之混合物之顆粒之平均顆粒尺寸為小於3微米。

【第4項】如請求項1所述之靶材，其中該二硼化鉭（ TaB_2 ）及/或硼化鎢（ WB_2 及/或 W_2B_5 ）及/或二硼化鉭（ TaB_2 ）及硼化鎢（ WB_2 及/或 W_2B_5 ）之混合

相之混合物中鉬（Ta）與鎢（W）之分子比在1：99至99：1範圍內。

【第5項】如請求項4所述之靶材，其中該二硼化鉬（TaB₂）及/或硼化鎢（WB₂及/或W₂B₅）及/或二硼化鉬（TaB₂）及硼化鎢（WB₂及/或W₂B₅）之混合相之混合物中鉬（Ta）與鎢（W）之分子比在10：90至90：10範圍內。

【第6項】如請求項1至5中任一項所述之靶材，其中該碳（C）呈石墨形式。

【第7項】如請求項1至5中任一項所述之靶材，其中僅二硼化鉬（TaB₂）及/或硼化鎢（WB₂及/或W₂B₅）及/或二硼化鉬（TaB₂）及硼化鎢（WB₂及/或W₂B₅）之混合相係呈X射線可識別相之形式存在。

【第8項】如請求項1至5中任一項所述之靶材，其中二硼化鉬（TaB₂）及/或硼化鎢（WB₂及/或W₂B₅）及/或二硼化鉬（TaB₂）及硼化鎢（WB₂及/或W₂B₅）之混合相係足夠均勻地分佈在靶材中，以確保在選擇尺寸為至少1 mm²之至少五個不同的方形或圓形測量區域時，在各情況下，在特定測量區域之表面處所測定之平均化學組成與自所有選擇之測量區域所計算之平均化學組成相差不大於20%。

【第9項】如請求項8所述之靶材，其中二硼化鉬（TaB₂）及/或硼化鎢（WB₂及/或W₂B₅）及/或二硼化鉬（TaB₂）及硼化鎢（WB₂及/或W₂B₅）之混合相係足夠均勻地分佈在靶材中，以確保在選擇尺寸為至少1 mm²之至少五個不同的方形或圓形測量區域時，在各情況下，在特定測量區域之表面處所測定之平均化學組成與自所有選擇之測量區域所計算之平均化學組成相差不大於10%。

【第10項】如請求項1至5中任一項所述之靶材，其中該靶材之X射線分析顯示各向同性結構而沒有偏好的結晶顆粒排列，其中二硼化鉬（TaB₂）及/或硼化鎢（WB₂及/或W₂B₅）及/或二硼化鉬（TaB₂）及硼化鎢（WB₂及/或W₂B₅）之

混合相之顆粒之縱橫比為小於1.5。

【第11項】如請求項10所述之靶材，其中該靶材之X射線分析顯示各向同性結構而沒有偏好的結晶顆粒排列，其中二硼化鉭（ TaB_2 ）及/或硼化鎢（ WB_2 及/或 W_2B_5 ）及/或二硼化鉭（ TaB_2 ）及硼化鎢（ WB_2 及/或 W_2B_5 ）之混合相之顆粒之縱橫比為小於1.2。

【第12項】如請求項11所述之靶材，其中該靶材之X射線分析顯示各向同性結構而沒有偏好的結晶顆粒排列，其中二硼化鉭（ TaB_2 ）及/或硼化鎢（ WB_2 及/或 W_2B_5 ）及/或二硼化鉭（ TaB_2 ）及硼化鎢（ WB_2 及/或 W_2B_5 ）之混合相之顆粒之縱橫比基本上為1。

【第13項】如請求項1至5中任一項所述之靶材，其中除鉭（Ta）、鎢（W）、硼（B）及碳（C）以外之任何存在的化學元素皆溶解於二硼化鉭（ TaB_2 ）及/或硼化鎢（ WB_2 及/或 W_2B_5 ）及/或二硼化鉭（ TaB_2 ）及硼化鎢（ WB_2 及/或 W_2B_5 ）之混合相之混合物之微觀結構中並且藉由X射線分析不能作為單獨相被檢測到。

【第14項】如請求項1至5中任一項所述之靶材，其中該靶材之HV30維氏硬度係大於1800 HV30。

【第15項】如請求項14所述之靶材，其中該靶材之HV30維氏硬度係大於2300 HV30。

【第16項】一種製造用於物理氣相沉積之靶材，尤其如請求項1至15中任一項所述之靶材之方法，其中將粉狀二硼化鉭（ TaB_2 ）及粉狀硼化鎢（ WB_2 及/或 W_2B_5 ）及視情況選用之粉狀碳（若不作為雜質存在）混和並且視情況將其機械研磨，並且藉由熱壓或火花電漿燒結（spark plasma sintering；SPS）將由此製造之粉末批料在模具中壓縮，其特徵在於

該粉末批料係由以下所組成：

95 mol%至100 mol%之二硼化鉭 (TaB_2) 及硼化鎢 (WB_2 及/或 W_2B_5) 之混合物；

及視情況選用之0.01 mol%至5 mol%之碳 (C) ，

其中，就金屬純度而言，該二硼化鉭 (TaB_2) 及硼化鎢 (WB_2 及/或 W_2B_5) 之混合物以及該碳 (C) 之量之總和為至少99.8 mol% ，

及其特徵在於該熱壓或火花電漿燒結 (SPS) 係在至少1750°C之溫度下進行。

【第17項】如請求項16所述之方法，其中該熱壓或火花電漿燒結 (SPS) 係在至少1850°C之溫度下進行。

【第18項】如請求項17所述之方法，其中該熱壓或火花電漿燒結 (SPS) 係在至少1950°C之溫度下進行。

【第19項】如請求項16所述之方法，其中該熱壓或火花電漿燒結 (SPS) 係在至少20 MPa之壓力下進行。

【第20項】如請求項19所述之方法，其中該熱壓或火花電漿燒結 (SPS) 係在至少30 MPa之壓力下進行。

【第21項】如請求項16至20中任一項所述之方法，其中該熱壓或火花電漿燒結 (SPS) 係在真空中或在惰性保護性氣體氛圍中進行。

【第22項】一種如請求項1至15中任一項所述之靶材之用途，其係用於物理氣相沉積方法 (PVD) 以將薄膜沉積至基板上。