



(11) **EP 1 648 034 B9**

(12) **KORRIGIERTE EUROPÄISCHE PATENTSCHRIFT**

(15) Korrekturinformation:
Korrigierte Fassung Nr. 1 (W1 B1)
Korrekturen, siehe
Beschreibung Abschnitt(e) 9

(51) Int Cl.:
H01L 31/0216 ^(2006.01) **C01G 35/00** ^(2006.01)
C23C 14/34 ^(2006.01)

(48) Corrigendum ausgegeben am:
14.07.2010 Patentblatt 2010/28

(45) Veröffentlichungstag und Bekanntmachung des
Hinweises auf die Patenterteilung:
30.12.2009 Patentblatt 2009/53

(21) Anmeldenummer: **05020190.4**

(22) Anmeldetag: **16.09.2005**

(54) **Aufdampfmaterial, enthaltend Ta₂O_x mit x = 4.81 bis 4.88, zur Herstellung hochbrechender Schichten**

Evaporation material comprising Ta₂O_x with x = 4.81 bis 4.88, for the deposition of layers with high refraction

Matériau à vaporisation, comprenant Ta₂O_x avec x = 4.81 à 4.88, pour déposer des couches avec réfraction élevée

(84) Benannte Vertragsstaaten:
AT BE BG CH CY CZ DE DK EE ES FI FR GB GR
HU IE IS IT LI LT LU LV MC NL PL PT RO SE SI
SK TR

(30) Priorität: **14.10.2004 DE 102004049996**

(43) Veröffentlichungstag der Anmeldung:
19.04.2006 Patentblatt 2006/16

(73) Patentinhaber: **Merck Patent GmbH**
64293 Darmstadt (DE)

(72) Erfinder:
• **Friz, Martin, Dr.**
64297 Darmstadt (DE)
• **Anthes, Uwe**
64711 Erbach (DE)

• **Dombrowski, Reiner**
64739 Höchst (DE)

(56) Entgegenhaltungen:
WO-A-2004/067463 US-A- 4 156 622

- **PATENT ABSTRACTS OF JAPAN** Bd. 017, Nr. 167 (C-1043), 31. März 1993 (1993-03-31) & JP 04 325669 A (CANON INC; others: 01), 16. November 1992 (1992-11-16)
- **JEHN H; OLZI E: "High temperature solid-solubility limit and phase studies in the system tantalum-oxygen" JOURNAL OF THE LESS-COMMON METALS**, Bd. 27, Nr. 3, Juni 1972 (1972-06), Seiten 297-309, Elsevier Sequoia S.A., Lausanne, [CH]

Anmerkung: Innerhalb von neun Monaten nach Bekanntmachung des Hinweises auf die Erteilung des europäischen Patents im Europäischen Patentblatt kann jedermann nach Maßgabe der Ausführungsordnung beim Europäischen Patentamt gegen dieses Patent Einspruch einlegen. Der Einspruch gilt erst als eingelegt, wenn die Einspruchsgebühr entrichtet worden ist. (Art. 99(1) Europäisches Patentübereinkommen).

EP 1 648 034 B9

Beschreibung

[0001] Die vorliegende Erfindung betrifft die Verwendung von Aufdampfmaterialelementen bestehend aus Ta_2O_x mit $x = 4.81$ bis 4.88 zur Herstellung hochbrechender Schichten und ein Verfahren zur Herstellung von hochbrechenden Schichten.

[0002] Zum Schutz der Oberflächen oder zur Erzielung bestimmter optischer Eigenschaften werden optische Bauteile üblicherweise mit dünnen Beschichtungen versehen. Bei derartigen optischen Bauteilen handelt es sich beispielsweise um optische Linsen, Brillengläser, Objektive für Kameras, Ferngläser oder für andere optische Geräte, um Strahlteiler, Prismen, Spiegel, Fensterscheiben und dergleichen. Die Beschichtungen dienen dabei einerseits zur Vergütung der genannten Oberflächen durch Härtung und/oder Erhöhung der chemischen Resistenz um Schädigungen durch mechanische, chemische oder Umwelteinflüsse zu vermindern oder zu vermeiden, andererseits aber oft auch zur Erzielung einer verminderten Reflexion, was insbesondere bei Brillengläsern und Objektiven der Fall ist.

[0003] In diesem Zusammenhang ist Tantal(V)-oxid (Ta_2O_5) ein bekanntes und häufig eingesetztes Material zur Herstellung hochbrechender Schichten. Üblicherweise erfolgt die Aufbringung von Ta_2O_5 -Schichten durch Verdampfen im Vakuum. Hierbei wird zunächst das zu beschichtende Substrat und eine Ta_2O_5 enthaltende Vorlage in einer geeigneten Hochvakuumaufdampfapparatur platziert, anschließend die Apparatur evakuiert und die Aufdampfsubstanz durch Erhitzen und/oder Elektronenstrahlbeschuss zur Verdampfung gebracht, wobei sich das Aufdampfmaterialelement als dünne Schicht auf der Substratoberfläche niederschlägt. Entsprechende Apparaturen und Verfahren sind gängiger Stand der Technik.

[0004] Ta_2O_5 hat in den oben genannten Verfahren den Nachteil, dass es beim Einschmelzen und Verdampfen größere Mengen Sauerstoff freisetzt. Dies erfolgt in der Regel so lange, bis eine Zusammensetzung der Formel Ta_2O_{5-x} mit $x = 0.2$ bis 0.4 erreicht ist. Die genaue Zusammensetzung hängt maßgeblich von der Temperatur der Substanz während der Verdampfung ab. Durch die Freisetzung von Sauerstoff ergibt sich in den Aufdampfanlagen eine Druckerhöhung, die je nach den Bedingungen sehr groß sein kann und bis zum Abbruch der Verdampfung führen kann.

[0005] Um diesen Druckanstieg während der Verdampfung zu vermeiden, wird Ta_2O_5 meist in einem vorgelagerten Verfahrensschritt vorgeschmolzen. Dazu legt man eine gewisse Menge Ta_2O_5 in einem Behälter vor, schmilzt das Ta_2O_5 im Vakuum ein und lässt die Schmelze abkühlen. Anschließend wird erneut Ta_2O_5 in den Behälter gegeben, um dieses mit den oben genannten Verfahrensschritten ebenfalls vorzuschmelzen. Dieser Vorgang wird so lange wiederholt, bis die für den Verdampfungsprozess benötigte Menge an geschmolzenem Material erhalten wurde. Je nach Schmelztemperatur und

Dauer des Schmelzvorgangs weist das erhaltene Aufdampfmaterialelement eine Zusammensetzung von $Ta_2O_{4.6}$ bis $Ta_2O_{4.8}$ auf. Das Vorschmelzen ist ein kostenintensiver und langwieriger Prozess und damit für die Bereitstellung größerer Mengen an Aufdampfmaterialelement nicht geeignet.

[0006] Aus US 4,156,622 ist bekannt, dass durch Elektronenstrahlverdampfung einer Mischung aus Ta_2O_5 und elementarem Tantal auf Solarzellen Tantalsuboxide der Formel Ta_2O_y mit $y = 2.5$ bis 4.8 , vorzugsweise mit $y = 3.3$ bis 4.5 , erhalten werden können. Die oben genannte Methode erweist sich aber als nachteilig, wenn möglichst Schichten homogener Zusammensetzung erhalten werden sollen, da lokale Inhomogenitäten bei der Mischung zur Abscheidung von Tantalsuboxiden unterschiedlicher Zusammensetzung führen. Die gezielte Steuerung der Schichtzusammensetzung ist damit mit der oben genannten Methode nicht erreichbar.

[0007] JP 04-325669 beschreibt eine gesinterte Mischung aus Ta_2O_5 und Ta, wobei der Anteil an Ta zwischen 4 und 55 Gew.-% beträgt. Dies entspricht Tantalsuboxiden mit der Formel Ta_2O_2 bis $Ta_2O_{4.76}$. Die erhaltenen Tantalsuboxide werden mittels Elektronenstrahlverdampfung verdampft und auf einem Substrat aufgebracht. Aus JP 62-207937 sind gesinterte Ta_2O_5 /Ta-Mischungen bekannt, wobei das Verhältnis von Ta_2O_5 zu Ta 9:1 beträgt. Dies entspricht einer Zusammensetzung gemäß der Formel $Ta_2O_{4.73}$.

[0008] Der Einsatz von Tantalsuboxiden der oben genannten Zusammensetzungen erweist sich aber als nachteilig, weil die damit aufgedampften Schichten vielfach Absorption im sichtbaren Bereich des Spektrums zeigen. Dieser Effekt ist unerwünscht und lässt sich auch nur durch nachträgliches Erhitzen der Beschichtung an Luft bei Temperaturen um 400°C beseitigen. Dies bedeutet die Notwendigkeit eines weiteren Prozessschrittes, der energetisch ungünstig ist und der darüber hinaus den Herstellungsprozess der gewünschten Schichten verlängert. Eine andere Möglichkeit die Bildung absorbierender Schichten zu vermeiden ist der Einsatz von Ionen- oder Plasma-gestützten Aufdampfprozessen, die die Bildung von ionisiertem Sauerstoff beinhalten. Diese speziellen Prozesse und die dafür nötigen Apparaturen sind sehr aufwendig und kostspielig und bedürfen einer genauen Prozesskontrolle, um das gewünschte Ergebnis zu erzielen. Für den großtechnischen Einsatz sind diese Prozesse damit ungeeignet.

[0009] Intensive Untersuchungen haben ergeben, dass durch Erhöhung des Sauerstoffanteils im Aufdampfmaterialelement die Bildung nichtabsorbierender Schichten begünstigt wird. Demgegenüber führt ein zu hoher Sauerstoffanteil zu dem vorab beschriebenen unerwünschten Druckanstieg. Es bestand daher die Aufgabe, Aufdampfmaterialelemente bereit zu stellen, die dieses Paradoxon zu überwinden vermögen, ohne dass der eigentliche Verdampfungsprozess modifiziert werden muss.

[0010] Die vorliegende Aufgabe wird durch die Verwendung von Aufdampfmaterialelementen gemäß der vorliegenden Erfindung in erfinderischer Weise erfüllt. Gegen-

stand der vorliegenden Erfindung ist demgemäss die Verwendung von Aufdampfmaterien bestehend aus Ta_2O_x mit $x = 4.81$ bis 4.88 zur Herstellung von hochbrechenden Schichten.

[0011] Weiterer Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist ein Verfahren gemäß Anspruch 6 zur Herstellung hochbrechender Schichten umfassend das Herstellen von Aufdampfmaterien bestehend aus Ta_2O_x mit $x = 4.81$ bis 4.88 , durch Mischen von Ta_2O_5 mit 1.9 bis 3.1 Gew.-% Ta, bezogen auf die Mischung, Komprimieren oder Suspendieren, Formen und anschließendes Sintern der Mischung im Vakuum.

[0012] Die erfindungsgemässen Aufdampfmaterien sind in vielerlei Hinsicht vorteilhaft. So zeigen die für die Herstellung der Aufdampfmaterien eingesetzten Mischungen aus Ta_2O_5 und Ta ein sehr gutes Verhalten beim Einschmelzen, in dessen Verlauf eine homogene und kompakte Schmelze entsteht. Dies ist besonders wichtig, um eine homogene Beschichtung ohne Schwankungen bei der Zusammensetzung der Beschichtung erreichen zu können. Bei Einsatz der erfindungsgemässen Aufdampfmaterien unter Verwendung der Elektronenstrahlverdampfung werden absorptionsfreie Schichten erhalten, ohne dass eine zusätzliche Nachbehandlung nötig wäre. Gleichzeitig ist nur ein geringer Anstieg des Druckes bei Verdampfung des Aufdampfmaterials zu beobachten, das heißt, es wird nur eine geringe Menge an Sauerstoff freigesetzt und die Kontrolle und Einhaltung der gewünschten Prozessparameter wird erleichtert und verbessert. Das spezielle Verhältnis von Tantal zu Sauerstoff in den erfindungsgemässen Aufdampfmaterien macht die Kombination der genannten Vorteile erst möglich und ist damit erfindungswesentlich.

[0013] Die erfindungsgemässen Aufdampfmaterien enthalten Ta_2O_x mit $x = 4.81$ bis 4.88 , vorzugsweise enthalten die Aufdampfmaterien $Ta_2O_{4.82}$. Letzteres ist erhältlich durch Mischen von Pa_2O_5 mit 3 Gew.-% Ta, bezogen auf die Mischung, Komprimieren oder Suspendieren, Formen und anschließendes Sintern der Mischung im Vakuum. In überraschender Weise hat sich gezeigt, dass Aufdampfmaterien dieser Zusammensetzung ganz besonders geeignet sind, daraus hochbrechende nichtabsorbierende Schichten herzustellen.

[0014] Bei dem erfindungsgemässen Verfahrensschritt a) zur Herstellung der oben beschriebenen Aufdampfmaterien wird Ta_2O_5 mit 1.9 bis 3.1 Gew.-% Ta, bezogen auf die Mischung, gemischt, die Mischung wird komprimiert oder suspendiert, geformt und anschließend im Vakuum gesintert. Zur Herstellung der bevorzugten Ausführungsform enthaltend $Ta_2O_{4.82}$ wird Ta_2O_5 mit 3 Gew.-% Ta, bezogen auf die Mischung, gemischt, die Mischung wird komprimiert oder suspendiert, geformt und anschließend im Vakuum gesintert.

[0015] Das oben genannte Gemisch aus Ta_2O_5 und Ta wird mittels geeigneter, an sich bekannter Maßnahmen der Komprimierung verdichtet und geformt. Es kann jedoch auch eine Suspension der gemischten Komponenten in einem geeigneten Trägermedium hergestellt

werden, welche geformt und anschließend getrocknet wird. Ein geeignetes Trägermedium ist beispielsweise Wasser, welchem je nach Bedarf Bindemittel wie Polyvinylalkohol, Methylzellulose oder Polyethylenglykol sowie gegebenenfalls Hilfsmittel, wie z.B. Netzmittel oder Entschäumer, zugesetzt werden. Nach dem Suspendieren erfolgt eine Formgebung. Hierbei können verschiedene bekannte Techniken, wie Strangpressen, Spritzgießen oder auch Sprühtrocknen Anwendung finden. Die erhaltenen Formen werden getrocknet und vom Bindemittel, beispielsweise durch Ausbrennen, befreit. Dies erfolgt aus Gründen einer besseren Handhabbarkeit und Dosierbarkeit der Mischungen. Daher sind die Formen, in welche das Gemisch gebracht wird, nicht limitiert. Geeignet sind alle Formen, welche eine einfache Handhabung und eine gute Dosierbarkeit ermöglichen, die insbesondere bei der kontinuierlichen Beschichtung von Substraten mit dem erfindungsgemässen Aufdampfmaterial und dem dafür nötigen Nachfüllprozess eine besondere Rolle spielen. Bevorzugte Formen sind daher verschiedene Tablettenformen, Pellets, Scheiben, Kegelstümpfe, Körner bzw. Granulate, Stangen oder auch Kugeln.

[0016] Anschließend werden die geformten Gemische gesintert. Der Sinterprozess erfolgt im Vakuum bei Temperaturen von 1300 bis 1800°C und einem Restdruck von unter 1 Pa, vorzugsweise bei Temperaturen von 1400 bis 1700°C .

[0017] Die entstehenden geformten Sinterprodukte bleiben in ihrer Form beim Lagern, Transportieren und beim Einfüllen in die Verdampfungsapparatur bestehen und sind in ihrer Zusammensetzung während des gesamten nachfolgenden Aufschmelz- und Verdampfungsprozesses stabil.

[0018] Bei der erfindungsgemässen Verwendung der Aufdampfmaterien zur Herstellung von hochbrechenden Schichten, lassen sich alle geeigneten Substrate mit dem erfindungsgemässen Aufdampfmaterial beschichten, insbesondere Scheiben, Prismen, Folien, geformte Substrate wie optische Linsen, Brillengläser und Objektive und dergleichen, welche aus den bekannten geeigneten Materialien wie verschiedenen Gläsern oder Kunststoffen bestehen können. Bezüglich Art, Größe, Form, Material und Oberflächenbeschaffenheit der zu beschichtenden Substrate ist die Anwendung der erfindungsgemässen Aufdampfmaterien daher keinerlei Beschränkungen unterworfen, sofern die Substrate in die Vakuumapparatur eingebracht werden können und bei den herrschenden Temperatur- und Druckverhältnissen stabil bleiben. Es hat sich jedoch als vorteilhaft herausgestellt, die Substrate zur Erhöhung der Dichte der aufgetragenen Schichten vor und während des Beschichtens zu erwärmen, so dass das Aufdampfmaterial auf ein vorgeheiztes Substrat trifft. Je nach Art der eingesetzten Substrate wird dabei auf Temperaturen bis 300°C erwärmt. Diese Maßnahme an sich ist jedoch bekannt.

[0019] Als Aufdampfverfahren wird üblicherweise ein Hochvakuumverdampfverfahren eingesetzt, bei wel-

chem das Aufdampfmateriale in einer geeigneten Vorlage, welche auch als Verdampfungstiegel oder-schiffchen bezeichnet wird, zusammen mit dem zu beschichtenden Substrat in eine Vakuumapparatur eingebracht wird.

[0020] Anschließend wird die Apparatur evakuiert und das Aufdampfmateriale durch Erhitzen und/oder Elektronenstrahlbeschuss zur Verdampfung gebracht. Dabei schlägt sich das Aufdampfmateriale als dünne Schicht auf dem Substrat nieder.

[0021] Der Einsatz aufwendiger Methoden bei der Beschichtung, z.B. der Ionenbeschuss (Ion Assisted Deposition, Plasma Assisted Deposition), ist bei Verwendung der erfindungsgemäßen Aufdampfmateriale nicht erforderlich. Dies verringert den apparativen Aufwand und verringert damit die Kosten für die Beschichtung, bei gleichzeitiger Qualität der erhaltenen hochbrechenden Schichten.

[0022] Die nachfolgenden Beispiele sollen die Erfindung näher erläutern, ohne sie jedoch zu begrenzen.

Beispiele

Beispiel 1: Herstellung des Aufdampfmateriale

[0023] 97 Gewichtsprozent Tantaloxid (Ta_2O_5) und 3 Gewichtsprozent Tantal-Metall-Pulver werden unter Zusatz von Wasser in einer Kugelmühle intensiv gemischt. Anschließend wird das Gemisch getrocknet und zu Körnern mit einer Korngröße von 1 bis 4 mm verarbeitet. Die Körner werden in einem Hochtemperatur-Vakuumofen im Vakuum bei einem Druck unter 10 mPa (1×10^{-4} mbar) mit einer Aufheizgeschwindigkeit von 1 K/min auf 1650°C erhitzt und 32 Stunden bei dieser Temperatur gehalten. Anschließend wird das Materiale mit 5 K/min abgekühlt. Nach Abkühlen auf 25°C wird der Vakuumofen mit Luft geflutet und das Materiale wird entnommen. Das erhaltene Aufdampfmateriale besteht aus harten, tiefschwarzen Körnern mit der Zusammensetzung $Ta_2O_{4,82}$.

Beispiel 2: Verwendung des Aufdampfmateriale zu Herstellung hochbrechender Schichten

[0024] Eine handelsübliche Aufdampfanlage (L560 von Fa. Leybold) wird mit gereinigten Substraten aus Quarzglas bestückt. Das Aufdampfmateriale aus Beispiel 1 wird in den wassergekühlten Kupfertiegel einer Elektronenstrahlverdampfeinrichtung gefüllt. Die Aufdampfanlage wird bis zu einem Druck von 1 mPa (1×10^{-5} mbar) evakuiert. Dann wird die Substratheizung auf 200°C eingestellt. Nach 1 Stunde ist eine gleichmäßige Substrattemperatur von etwa 160°C erreicht. Anschließend wird mit einem Regulierventil Sauerstoff in die Anlage eingelassen bis sich ein Druck von 20 mPa (2×10^{-4} mbar) einstellt. Das Aufdampfmateriale wird dann unter einer Blende eingeschmolzen und auf die Verdampfungstemperatur erhitzt. Beim Einschmelzen und Verdampfen tritt kein Druckanstieg und kein Spritzen durch Schmelztröpfchen auf. Dann wird die Blende geöffnet. Mit einem Schwing-

quarzschildtdickenmessgerät wird die Aufdampftrate auf 0.2 nm/s eingeregelt. Anschließend wird die Substanz mit dieser Aufdampftrate verdampft bis eine Schildtdicke von 230 nm erreicht ist. Die Verdampfung wird danach beendet.

[0025] Die mit dem Aufdampfmateriale aufgebrachte Schildt hat einen Brechungsindex von 2.05 bei 500 nm. Die Schildt ist homogen, das heißt der Brechungsindex ist über die gesamte Schildtdicke konstant. Die Schildt ist im sichtbaren Spektralbereich bei Wellenlängen über 350 nm absorptionsfrei. Die Absorption steigt erst bei etwa 300 nm steil zum ultravioletten Spektralbereich hin an.

Patentansprüche

1. Verwendung von Aufdampfmateriale bestehend aus Ta_2O_x mit $x = 4.81$ bis 4.88 zur Herstellung von hochbrechenden Schildten.
2. Verwendung gemäß Anspruch 1, **dadurch gekennzeichnet, dass** die Aufdampfmateriale aus $Ta_2O_{4,82}$ bestehen.
3. Verwendung gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 2, **dadurch gekennzeichnet, dass** die Aufdampfmateriale durch Mischen von Ta_2O_5 mit 1.9 bis 3.1 Gew.-% Ta, bezogen auf die Mischung, Komprimieren oder Suspendieren, Formen und anschließendes Sintern der Mischung im Vakuum erhältlich sind.
4. Verwendung gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 3, **dadurch gekennzeichnet, dass** die Aufdampfmateriale durch Mischen von Ta_2O_5 mit 3 Gew.-% Ta, bezogen auf die Mischung, erhältlich sind.
5. Verwendung gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 4, **dadurch gekennzeichnet, dass** die Aufdampfmateriale in Form von Tabletten, Pellets, Scheiben, Kegelstümpfen, Körnern, Granulaten, Stangen oder Kugeln vorliegen.
6. Verfahren zur Herstellung von hochbrechenden Schildten, umfassend
 - (a) das Herstellen von Aufdampfmateriale bestehend aus Ta_2O_x mit $x = 4.81$ bis 4.88 durch Mischen von Ta_2O_5 mit 1.9 bis 3.1 Gew.-% Ta, bezogen auf die Mischung, Komprimieren oder Suspendieren, Formen und anschließendes Sintern der Mischung im Vakuum,
 - (b) das Einbringen der unter (a) hergestellten Aufdampfmateriale in eine mit einem zu beschichtenden Substrat bestückte Vakuumapparatur,

- (c) das Evakuieren der Vakuumapparatur,
(d) das Verdampfen der Aufdampfmaterien durch Erhitzen und/oder Elektronenstrahlbeschuss, wobei sich das Aufdampfmaterial auf dem Substrat niederschlägt.
7. Verfahren gemäß Anspruch 6, **dadurch gekennzeichnet, dass** Ta_2O_5 mit 3 Gew.-% Ta, bezogen auf die Mischung, gemischt wird, die Mischung komprimiert oder suspendiert, geformt und anschließend im Vakuum gesintert wird.
8. Verfahren gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 6 bis 7, **dadurch gekennzeichnet, dass** das Substrat vor und/oder während des Beschichtens erwärmt wird.
9. Verfahren gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 6 bis 8, **dadurch gekennzeichnet, dass** als Substrate Scheiben, Prismen, Folien, optische Linsen Brillengläser oder Objektive verwendet werden.
10. Verfahren gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 6 bis 9, **dadurch gekennzeichnet, dass** Substrate bestehend aus verschiedenen Gläsern oder Kunststoffen verwendet werden.
11. Verfahren gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 6 bis 10, **dadurch gekennzeichnet, dass** das Mischen von Ta_2O_5 mit Ta unter Zusatz eines Trägermediums und/oder Binde- bzw. Hilfsmitteln erfolgt und das Trägermedium und die Binde- bzw. Hilfsmittel nach dem Formen entfernt werden.
- Claims**
1. Use of vapour-deposition materials consisting of Ta_2O_x , where $x = 4.81$ to 4.88 , for the production of highly refractive layers.
2. Use according to Claim 1, **characterised in that** the vapour-deposition materials consist of $Ta_2O_{4.82}$.
3. Use according to one or more of Claims 1 to 2, **characterised in that** the vapour-deposition materials are obtainable by mixing Ta_2O_5 with 1.9 to 3.1 % by weight of Ta, based on the mixture, compressing or suspending, shaping and subsequently sintering the mixture in vacuo.
4. Use according to one or more of Claims 1 to 3, **characterised in that** the vapour-deposition materials are obtainable by mixing Ta_2O_5 with 3% by weight of Ta, based on the mixture.
5. Use according to one or more of Claims 1 to 4, **characterised in that** the vapour-deposition materials
- are in the form of tablets, pellets, discs, truncated cones, grains, granules, rods or spheres.
6. Process for the production of highly refractive layers, comprising
- (a) the preparation of vapour-deposition materials consisting of Ta_2O_x , where $x = 4.81$ to 4.88 , by mixing Ta_2O_5 with 1.9 to 3.1% by weight of Ta, based on the mixture, compressing or suspending, shaping and subsequently sintering the mixture in vacuo,
- (b) the introduction of the vapour-deposition materials prepared under
- (a) into a vacuum apparatus fitted with a substrate to be coated,
- (c) the evacuation of the vacuum apparatus,
- (d) the evaporation of the vapour-deposition materials by heating and/or electron beam bombardment, during which the vapour-deposition material precipitates on the substrate.
7. Process according to Claim 6, **characterised in that** Ta_2O_5 is mixed with 3% by weight of Ta, based on the mixture, the mixture is compressed or suspended, shaped and subsequently sintered in vacuo.
8. Process according to one or more of Claims 6 to 7, **characterised in that** the substrate is warmed before and/or during the coating.
9. Process according to one or more of Claims 6 to 8, **characterised in that** the substrates used are discs, prisms, films, optical lenses, spectacle lenses or objectives.
10. Process according to one or more of Claims 6 to 9, **characterised in that** substrates consisting of different glasses or plastics are used.
11. Process according to one or more of Claims 6 to 10, **characterised in that** the mixing of Ta_2O_5 with Ta is carried out with addition of a carrier medium and/or binders or assistants, and the carrier medium and the binders or assistants are removed after the shaping.
- Revendications**
1. Utilisation de matériaux de dépôt en phase vapeur constitués de Ta_2O_x , où $x = 4,81$ à $4,88$, pour la production de couches hautement réfractives.
2. Utilisation selon la revendication 1, **caractérisée en ce que** les matériaux de dépôt en phase vapeur sont constitués de $Ta_2O_{4,82}$.

3. Utilisation selon l'une ou plusieurs des revendications 1 à 2, **caractérisée en ce que** les matériaux de dépôt en phase vapeur peuvent être obtenus par le mélange de Ta_2O_5 avec de 1,9 à 3,1 % en poids de Ta, sur la base du mélange, la compression ou la mise en suspension, la mise en forme puis le frittage du mélange sous vide.
4. Utilisation selon l'une ou plusieurs des revendications 1 à 3, **caractérisée en ce que** les matériaux de dépôt en phase vapeur peuvent être obtenus par le mélange de Ta_2O_5 avec 3% en poids de Ta, sur la base du mélange.
5. Utilisation selon l'une ou plusieurs des revendications 1 à 4, **caractérisée en ce que** les matériaux de dépôt en phase vapeur sont sous la forme de comprimés, de pastilles, de disques, de cônes tronqués, de grains, de granulés, de bâtonnets ou de sphères.
6. Procédé de production de couches hautement réfractives, comprenant
 - (a) la préparation de matériaux de dépôt en phase vapeur constitués de Ta_2O_x , où $x = 4,81$ à $4,88$, par le mélange de Ta_2O_5 avec de 1,9 à 3,1% en poids de Ta, sur la base du mélange, la compression ou la mise en suspension, la mise en forme puis le frittage du mélange sous vide,
 - (b) l'introduction des matériaux de dépôt en phase vapeur préparés en
 - (a) dans un appareil à vide pourvu d'un substrat à revêtir,
 - (c) l'évacuation de l'appareil à vide,
 - (d) l'évaporation des matériaux de dépôt en phase vapeur par chauffage et/ou bombardement électronique, lors duquel ou desquels le matériau de dépôt en phase vapeur précipite sur le substrat.
7. Procédé selon la revendication 6, **caractérisé en ce que** le Ta_2O_5 est mélangé avec 3% en poids de Ta, sur la base du mélange, le mélange est compressé ou mis en suspension, mis en forme puis fritté sous vide.
8. Procédé selon l'une ou plusieurs des revendications 6 à 7, **caractérisé en ce que** le substrat est chauffé avant et/ou pendant le revêtement.
9. Procédé selon l'une ou plusieurs des revendications 6 à 8, **caractérisé en ce que** les substrats utilisés sont des disques, des prismes, des films, des lentilles optiques, des lentilles ophtalmiques ou des objectifs.
10. Procédé selon l'une ou plusieurs des revendications 6 à 9, **caractérisé en ce qu'**on utilise des substrats constitués de différents verres ou plastiques.
11. Procédé selon l'une ou plusieurs des revendications 6 à 10, **caractérisé en ce que** le mélange de Ta_2O_5 avec du Ta est effectué avec l'addition d'un milieu véhicule et/ou des liants ou auxiliaires, et le milieu véhicule et les liants ou auxiliaires sont éliminés après la mise en forme.

IN DER BESCHREIBUNG AUFGEFÜHRTE DOKUMENTE

Diese Liste der vom Anmelder aufgeführten Dokumente wurde ausschließlich zur Information des Lesers aufgenommen und ist nicht Bestandteil des europäischen Patentdokumentes. Sie wurde mit größter Sorgfalt zusammengestellt; das EPA übernimmt jedoch keinerlei Haftung für etwaige Fehler oder Auslassungen.

In der Beschreibung aufgeführte Patentdokumente

- US 4156622 A [0006]
- JP 4325669 A [0007]
- JP 62207937 A [0007]