(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2015 年 3 月 26 日(26.03.2015)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2015/040979 A1

(51) 国際特許分類:
C09K 3/14 (2006.01) *C09G 1/02* (2006.01)
B24B 37/00 (2012.01) *H01L 21/304* (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2014/071209

(22) 国際出願日: 2014 年 8 月 11 日(11.08.2014)

(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 2013-195270 2013 年 9 月 20 日(20.09.2013) JP
特願 2013-204183 2013 年 9 月 30 日(30.09.2013) JP

(71) 出願人: 株式会社フジミインコーポレーテッド **(FUJIMI INCORPORATED)** [JP/JP]; 〒4528502 愛知県清須市西枇杷島町地領二丁目１番地１ Aichi (JP).

(72) 発明者: 鈴木　章太**(SUZUKI, Shota)**; 〒4528502 愛知県清須市西枇杷島町地領二丁目１番地１　株式会社フジミインコーポレーテッド内 Aichi (JP). 井澤　由裕**(IZAWA, Yoshihiro)**; 〒4528502 愛知県清須市西枇杷島町地領二丁目１番地１　株式会社フジミインコーポレーテッド内 Aichi (JP).

(74) 代理人: 八田国際特許業務法人**(HATTA & ASSOCIATES)**; 〒1020084 東京都千代田区二番町１１番地９　ダイアパレス二番町 Tokyo (JP).

(81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告（条約第 21 条(3)）

WO 2015/040979 A1

(54) **Title**: POLISHING COMPOSITION

(54) 発明の名称 : 研磨用組成物

(57) **Abstract**: The present invention is a polishing composition containing: silica having functional groups that satisfy at least one of the following conditions (1) and (2), the functional groups immobilized on the surface of the silica; and a pH adjuster. Condition (1): The functional groups have amino groups. Condition (2): The functional groups have halogeno groups. This polishing composition makes it possible to adequately control the polishing rate of Si-containing material.

(57) 要約: 本願発明は、下記条件（１）および（２）の少なくとも１つを満たす官能基が表面に固定化されてなるシリカと、ｐＨ調整剤とを含む研磨用組成物；条件（１）：前記官能基がアミノ基を有する　条件（２）：前記官能基がハロゲノ基を有する　の発明であり、本願発明の研磨用組成物は、Ｓｉ含有材料の研磨レートを十分に制御することができるものである。

明　細　書

発明の名称 ： 研磨用組成物

技術分野

[0001] 本発明は、半導体デバイス製造プロセスにおいて使用される研磨用組成物およびそれを用いた研磨方法に関する。

背景技術

[0002] 近年、ＬＳＩ（Ｌａｒｇｅ　Ｓｃａｌｅ　Ｉｎｔｅｇｒａｔｉｏｎ）の高集積化、高性能化に伴って新たな微細加工技術が開発されている。化学機械研磨（ｃｈｅｍｉｃａｌ　ｍｅｃｈａｎｉｃａｌ　ｐｏｌｉｓｈｉｎｇ；ＣＭＰ）法もその一つであり、ＬＳＩ製造工程、特に多層配線形成工程における層間絶縁膜の平坦化、金属プラグ形成、埋め込み配線（ダマシン配線）形成において頻繁に利用される技術である。この技術は、例えば、特許文献１に開示されている。

[0003] 近年、ＣＭＰは、半導体製造における各工程に適用されてきており、その一態様として、例えばトランジスタ作製におけるゲート形成工程への適用が挙げられる。

[0004] トランジスタ作製の際には、多結晶シリコン（ポリシリコン）やシリコン窒化物（窒化ケイ素）といったＳｉ含有材料を研磨することがあり、各Ｓｉ含有材料の研磨レートを制御することが求められている。例えば、特許文献２には、コロイダルシリカと、スルホン酸基またはホスホン酸基を有する有機酸と、を含有するｐＨ２．５～５の研磨用組成物が開示されている。特許文献２によると、例えば、窒化ケイ素と、ポリシリコン等との異なるＳｉ含有材料を研磨する際に、当該研磨用組成物を用いることにより、窒化ケイ素を含む層の研磨速度を高めることができ、かつ、ポリシリコン、変性ポリシリコン、酸化ケイ素、炭化ケイ素、および酸化炭化ケイ素等のケイ素系化合物を含む層の研磨を選択的に抑制することができる、としている。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献1：米国特許第４９４４８３６号明細書

特許文献2：特開２０１０－０４１０３７号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] しかしながら、上記特許文献２に記載の研磨用組成物を以ってしても、Ｓｉ含有材料の研磨レートを十分に制御することができず、さらなる改良が望まれていた。

[0007] そこで本発明は、Ｓｉ含有材料の研磨レートを十分に制御することができる研磨用組成物を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0008] 本発明者らは、上記課題を解決すべく鋭意研究を積み重ねた。その結果、シリカ表面に特定の官能基を固定化することによって、驚くべきことに、上記課題が解決されることを見出し、本発明を完成させるに至った。

[0009] すなわち、本発明は、下記条件（１）および（２）の少なくとも１つを満たす官能基が表面に固定化されてなるシリカと、ｐＨ調整剤とを含む研磨用組成物である；

条件（１）：前記官能基がアミノ基を有する、

条件（２）：前記官能基がハロゲノ基を有する。

発明の効果

[0010] 本発明によれば、Ｓｉ含有材料の研磨レートを十分に制御することができる研磨用組成物が提供されうる。

発明を実施するための形態

[0011] 以下、本発明を説明する。なお、本発明は、以下の実施の形態のみには限定されない。また、本明細書において、範囲を示す「Ｘ～Ｙ」は「Ｘ以上Ｙ以下」を意味する。また、特記しない限り、操作および物性等の測定は室温（２０～２５℃）／相対湿度４０～５０％の条件で測定する。

[0012] ＜研磨用組成物＞

本発明の第一は、下記条件（１）および（２）の少なくとも１つを満たす官能基が表面に固定化されてなるシリカ（以下、「特定の官能基が表面に固定化されてなるシリカ」または単に「シリカ」とも記す）と、ｐＨ調整剤とを含む研磨用組成物である；

条件（１）：前記官能基がアミノ基を有する、

条件（２）：前記官能基がハロゲノ基を有する。

[0013] 本発明の研磨用組成物によると、Ｓｉ含有材料の研磨レートを十分に制御することができる。このような効果が奏される詳細な理由は不明であるが、以下のメカニズムによると推測される。

[0014] 研磨用組成物に含まれるシリカの表面に固定化されている官能基が条件（１）（官能基がアミノ基を有する）を満たす場合、当該研磨用組成物を用いることによってシリコン窒化物の研磨レートが低減されうる。これは、シリカ表面にアミノ基を有する官能基が固定化されることによって、官能基が固定化されたシリカのゼータ電位は元のシリカと異なる値に変化する。そのゼータ電位は、シリコン窒化物のゼータ電位と同符号となる。その結果、アミノ基を有する官能基が表面に固定化されたシリカとシリコン窒化物とは静電的に反発することとなるため、接触頻度が減少して研磨が抑制されるものと推測される。

[0015] 一方、研磨用組成物に含まれるシリカに固定化される官能基が条件（２）（官能基がハロゲノ基を有する）を満たす場合は、シリコン窒化物に対する多結晶シリコンの研磨選択性が向上し得る（すなわち、選択比（＝多結晶シリコンの研磨レート／シリコン窒化物の研磨レート）が大きくなる）。これは、シリカ表面にハロゲノ基を有する官能基が固定化されることによって、研磨対象物である多結晶シリコンとハロゲノ基が求核付加反応を起こし、シリコン原子とハロゲノ基が結合する。それにより、多結晶シリコン中のシリコン原子同士の結合が弱まり、結合が切れやすくなる。その結果、多結晶シリコンの研磨レートが向上するものと推測される。

[0016] 一方、シリコン窒化物とハロゲノ基も求核付加反応を起こし、シリコン原子とハロゲノ基が結合するが、シリコン窒化物は強固な結晶であるため、多結晶シリコンほどの高研磨レートを発現させないものと推測される。

[0017] なお、上記のメカニズムは推測によるものであり、本発明は上記メカニズムに何ら限定されるものではない。

[0018] ［シリカ］

本発明の研磨用組成物は、条件（１）および（２）の少なくとも１つを満たす官能基が表面に固定化されてなるシリカを必須に含む。当該シリカは、研磨用組成物において砥粒としての機能を有する。

[0019] 本発明のシリカは、条件（１）および（２）の少なくとも１つを満たす官能基が表面に固定化されていればよい。すなわち、本発明のシリカは、（ｉ）アミノ基を有する官能基のみが表面に固定化されてなる場合；（ｉｉ）ハロゲノ基を有する官能基のみが表面に固定化されてなる場合；（ｉｉｉ）アミノ基およびハロゲノ基を両方有する官能基が表面に固定化されてなる場合；（ｉｖ）アミノ基を有する官能基とハロゲノ基を有する官能基との両方が表面に固定化されてなる場合を包含する。このうち、組成物の安定性の観点から、（ｉ）または（ｉｉ）の場合であることが好ましい。以下では、（ｉ）および（ｉｉ）の場合について説明する。

[0020] 官能基が固定化される前の原料となるシリカ（以下、単に「原料シリカ」とも記す）は、特に制限されないが、例えば、フュームドシリカやコロイダルシリカ等が挙げられる。なかでも、研磨用組成物中の砥粒の分散安定性の観点から、コロイダルシリカが好ましい。

[0021] アミノ基を有する官能基が表面に固定化されてなるシリカ（上記（ｉ）の場合）は、アミノ基を有する官能基がシリカ表面に化学的に結合（例えば、共有結合）されてなる。

[0022]

アミノ基を有する官能基は、特に制限されず、アミノ基のみからなる場合であってもよいし、リンカー構造にアミノ基が結合したものであってもよい

。また、後者の場合、１つの官能基は、アミノ基を１つ有していてもよいし、複数有していてもよい。リンカー構造も特に制限されないが、研磨用組成物中の砥粒の分散安定性や反応性の観点から、炭素原子数２～５の直鎖又は分岐の、アルキレン基（－C_nH_{2n}－）、オキシアルキレン基（－OC_nH_{2n}－）、アリーレン基、またはこれらの組み合わせであることが好ましい。アミノ基を有する官能基の具体例としては、後述のシランカップリング剤由来の官能基が挙げられる。

[0023] ハロゲノ基を有する官能基が表面に固定化されてなるシリカ（上記（ｉｉ）の場合）は、ハロゲノ基を有する官能基がシリカ表面に化学的に結合（例えば、共有結合）されてなる。

[0024] ハロゲノ基としては、フルオロ基（－Ｆ）、クロロ基（－Ｃｌ）、ブロモ基（－Ｂｒ）、ヨード基（－Ｉ）が挙げられる。なかでも、組成物の安全性の観点から、クロロ基、ブロモ基、ヨード基が好ましく、クロロ基、ブロモ基がより好ましい。

[0025] ハロゲノ基を有する官能基は、特に制限されず、ハロゲノ基のみからなる場合であってもよいし、リンカー構造にハロゲノ基が結合したものであってもよい。また、後者の場合、１つの官能基は、ハロゲノ基を１つ有していてもよいし、複数有していてもよく、この場合はハロゲノ基が１種のみであってもよいし、２種以上が組み合わされていても構わない。リンカー構造も特に制限されないが、研磨用組成物中の砥粒の分散安定性や反応性の観点から、炭素原子数２～５の直鎖又は分岐の、アルキレン基（－C_nH_{2n}－）、オキシアルキレン基（－OC_nH_{2n}－）、アリーレン基、またはこれらの組み合わせであることが好ましい。ハロゲノ基を有する官能基の具体例としては、後述のシランカップリング剤由来の官能基が挙げられる。

[0026] シリカは、通常SiO_2からなる一次粒子が凝集して二次粒子を構成している。本発明の特定の官能基が表面に固定化されてなるシリカの平均一次粒子径は、好ましくは５ｎｍ以上であり、より好ましくは７ｎｍ以上であり、さらに好ましくは１０ｎｍ以上である。平均一次粒子径が大きくなるにつれて

、研磨用組成物による研磨対象物の研磨レートが向上する利点がある。

[0027] 一方、特定の官能基が表面に固定化されてなるシリカの平均一次粒子径は、好ましくは１５０ｎｍ以下であり、より好ましくは１２０ｎｍ以下であり、さらに好ましくは１００ｎｍ以下である。平均一次粒子径が小さくなるにつれて、研磨用組成物を用いて研磨した後の研磨対象物の表面にスクラッチが生じるのを抑えることができる利点がある。なお、当該平均一次粒子径の値は、ＢＥＴ法で測定される比表面積に基づいて算出される。

[0028] 本発明の特定の官能基が表面に固定化されてなるシリカの平均二次粒子径は、好ましくは１０ｎｍ以上であり、より好ましくは１５ｎｍ以上であり、さらに好ましくは２０ｎｍ以上である。平均二次粒子径が大きくなるにつれて、研磨用組成物による研磨対象物の研磨レートが向上する利点がある。

[0029] 一方、特定の官能基が表面に固定化されてなるシリカの平均二次粒子径は、好ましくは２００ｎｍ以下であり、より好ましくは１８０ｎｍ以下であり、さらに好ましくは１５０ｎｍ以下である。平均二次粒子径が小さくなるにつれて、研磨用組成物を用いて研磨した後の研磨対象物の表面にスクラッチが生じるのを抑えることができる利点がある。なお、当該平均二次粒子径の値は、レーザ光を用いた光散乱法で測定される比表面積に基づいて算出される。

[0030] 本発明の特定の官能基が表面に固定化されてなるシリカは、合成品を用いてもよいし、市販品を用いてもよい。また、特定の官能基が表面に固定化されてなるシリカは、１種のみを単独で使用してもよいし、２種以上を組み合わせて使用しても構わない。

[0031] ［シリカの製造方法］

本発明の特定の官能基が表面に固定化されてなるシリカの製造方法は、特に制限されないが、例えば、原料シリカに対して特定の官能基を有するシランカップリング剤を添加し、反応させ、シリカの表面に特定の官能基を結合させることで製造することができる。

[0032] アミノ基を有するシランカップリング剤は、特に制限されないが、具体例

としては、例えば、（３－アミノプロピル）トリエトキシシラン、（３－アミノプロピル）トリプロポキシシラン、（３－アミノプロピル）トリブトキシシラン、などの（アミノプロピル）トリアルコキシシラン、（３－アミノプロピル）メチルジメトキシシラン、（３－アミノプロピル）メチルジエトキシシラン、（３－アミノプロピル）メチルジプロポキシシラン、（３－アミノプロピル）メチルジブトキシシラン、（３－アミノプロピル）エチルジメトキシシラン、（３－アミノプロピル）プロピルジメトキシシラン、（３－アミノプロピル）ブチルジメトキシシラン、（３－アミノプロピル）エチルジエトキシシラン、（３－アミノプロピル）プロピルジエトキシシラン、（３－アミノプロピル）ブチルジエトキシシラン、（３－アミノプロピル）エチルジプロポキシシラン、（３－アミノプロピル）プロピルジプロポキシシラン、（３－アミノプロピル）ブチルジプロポキシシラン、（３－アミノプロピル）エチルジブトキシシラン、（３－アミノプロピル）プロピルジブトキシシラン、（３－アミノプロピル）ブチルジブトキシシラン、などの（アミノプロピル）アルキルジアルコキシシラン、（３－アミノプロピル）ジメチルメトキシシラン、（３－アミノプロピル）ジエチルメトキシシラン、（３－アミノプロピル）ジプロピルメトキシシラン、（３－アミノプロピル）ジブチルメトキシシラン、（３－アミノプロピル）ジメチルエトキシシラン、（３－アミノプロピル）ジエチルエトキシシラン、（３－アミノプロピル）ジプロピルエトキシシラン、（３－アミノプロピル）ジブチルエトキシシラン、（３－アミノプロピル）ジメチルプロポキシシラン、（３－アミノプロピル）ジエチルプロポキシシラン、（３－アミノプロピル）ジプロピルプロポキシシラン、（３－アミノプロピル）ジブチルプロポキシシラン、（３－アミノプロピル）ジメチルブトキシシラン、（３－アミノプロピル）ジエチルブトキシシラン、（３－アミノプロピル）ジプロピルブトキシシラン、（３－アミノプロピル）ジブチルブトキシシラン、などの（アミノプロピル）ジアルキルアルコキシシラン、［３－（メチルアミノ）プロピル］トリメトキシシラン、［３－（メチルアミノ）プロピル］トリエトキシシラン、

［３－（メチルアミノ）プロピル］トリプロポキシシラン、［３－（メチルアミノ）プロピル］トリブトキシシラン、などの［（メチルアミノ）プロピル］トリアルコキシシラン、［３－（メチルアミノ）プロピル］メチルジメトキシシラン、［３－（メチルアミノ）プロピル］エチルジメトキシシラン、［３－（メチルアミノ）プロピル］プロピルジメトキシシラン、［３－（メチルアミノ）プロピル］ブチルジメトキシシラン、［３－（メチルアミノ）プロピル］メチルジエトキシシラン、［３－（メチルアミノ）プロピル］エチルジエトキシシラン、［３－（メチルアミノ）プロピル］プロピルジエトキシシラン、［３－（メチルアミノ）プロピル］ブチルジエトキシシラン、［３－（メチルアミノ）プロピル］メチルジプロポキシシラン、［３－（メチルアミノ）プロピル］エチルジプロポキシシラン、［３－（メチルアミノ）プロピル］プロピルジプロポキシシラン、［３－（メチルアミノ）プロピル］ブチルジプロポキシシラン、［３－（メチルアミノ）プロピル］メチルジブトキシシラン、［３－（メチルアミノ）プロピル］エチルジブトキシシラン、［３－（メチルアミノ）プロピル］プロピルジブトキシシラン、［３－（メチルアミノ）プロピル］ブチルジブトキシシラン、などの［（メチルアミノ）プロピル］アルキルジアルコキシシラン、［３－（メチルアミノ）プロピル］ジメチルメトキシシラン、［３－（メチルアミノ）プロピル］ジエチルメトキシシラン、［３－（メチルアミノ）プロピル］ジプロピルメトキシシラン、［３－（メチルアミノ）プロピル］ジブチルメトキシシラン、［３－（メチルアミノ）プロピル］ジメチルエトキシシラン、［３－（メチルアミノ）プロピル］ジエチルエトキシシラン、［３－（メチルアミノ）プロピル］ジプロピルエトキシシラン、［３－（メチルアミノ）プロピル］ジブチルエトキシシラン、［３－（メチルアミノ）プロピル］ジメチルプロポキシシラン、［３－（メチルアミノ）プロピル］ジエチルプロポキシシラン、［３－（メチルアミノ）プロピル］ジプロピルプロポキシシラン、［３－（メチルアミノ）プロピル］ジブチルプロポキシシラン、［３－（メチルアミノ）プロピル］ジメチルブトキシシラン、［３－（メチルアミノ）プロ

ピル］ジエチルブトキシシラン、［３－（メチルアミノ）プロピル］ジプロピルブトキシシラン、［３－（メチルアミノ）プロピル］ジブチルブトキシシラン、などの［（メチルアミノ）プロピル］ジアルキルアルコキシシラン、［３－（ジメチルアミノ）プロピル］トリメトキシシラン、［３－（ジメチルアミノ）プロピル］トリエトキシシラン、［３－（ジメチルアミノ）プロピル］トリプロポキシシラン、［３－（ジメチルアミノ）プロピル］トリブトキシシラン、などの［（ジメチルアミノ）プロピル］トリアルコキシシラン、［３－（ジメチルアミノ）プロピル］メチルジメトキシシラン、［３－（ジメチルアミノ）プロピル］エチルジメトキシシラン、［３－（ジメチルアミノ）プロピル］プロピルジメトキシシラン、［３－（ジメチルアミノ）プロピル］ブチルジメトキシシラン、［３－（ジメチルアミノ）プロピル］メチルジエトキシシラン、［３－（ジメチルアミノ）プロピル］エチルジエトキシシラン、［３－（ジメチルアミノ）プロピル］プロピルジエトキシシラン、［３－（ジメチルアミノ）プロピル］ブチルジエトキシシラン、［３－（ジメチルアミノ）プロピル］メチルジプロポキシシラン、［３－（ジメチルアミノ）プロピル］エチルジプロポキシシラン、［３－（ジメチルアミノ）プロピル］プロピルジプロポキシシラン、［３－（ジメチルアミノ）プロピル］ブチルジプロポキシシラン、［３－（ジメチルアミノ）プロピル］メチルジブトキシシラン、［３－（ジメチルアミノ）プロピル］エチルジブトキシシラン、［３－（ジメチルアミノ）プロピル］プロピルジブトキシシラン、［３－（ジメチルアミノ）プロピル］ブチルジブトキシシラン、などの［（ジメチルアミノ）プロピル］アルキルジアルコキシシラン、［３－（ジメチルアミノ）プロピル］ジメチルメトキシシラン、［３－（ジメチルアミノ）プロピル］ジエチルメトキシシラン、［３－（ジメチルアミノ）プロピル］ジプロピルメトキシシラン、［３－（ジメチルアミノ）プロピル］ジブチルメトキシシラン、［３－（ジメチルアミノ）プロピル］ジメチルエトキシシラン、［３－（ジメチルアミノ）プロピル］ジエチルエトキシシラン、［３－（ジメチルアミノ）プロピル］ジプロピルエトキシシラン、［３

－（ジメチルアミノ）プロピル］ジブチルエトキシシラン、［３－（ジメチルアミノ）プロピル］ジメチルプロポキシシラン、［３－（ジメチルアミノ）プロピル］ジエチルプロポキシシラン、［３－（ジメチルアミノ）プロピル］ジプロピルプロポキシシラン、［３－（ジメチルアミノ）プロピル］ジブチルプロポキシシラン、［３－（ジメチルアミノ）プロピル］ジメチルブトキシシラン、［３－（ジメチルアミノ）プロピル］ジエチルブトキシシラン、［３－（ジメチルアミノ）プロピル］ジプロピルブトキシシラン、［３－（ジメチルアミノ）プロピル］ジブチルブトキシシラン、などの［（ジメチルアミノ）プロピル］ジアルキルアルコキシシラン、［３－（トリメトキシシリル）プロピル］トリメチルアンモニウム、［３－（トリエトキシシリル）プロピル］トリメチルアンモニウム、［３－（トリプロポキシシリル）プロピル］トリメチルアンモニウム、［３－（トリブトキシシリル）プロピル］トリメチルアンモニウム、などの［（トリアルコキシシリル）プロピル］トリメチルアンモニウム、［３－（メチルジメトキシシリル）プロピル］トリメチルアンモニウム、［３－（エチルジメトキシシリル）プロピル］トリメチルアンモニウム、［３－（プロピルジメトキシシリル）プロピル］トリメチルアンモニウム、［３－（ブチルジメトキシシリル）プロピル］トリメチルアンモニウム、［３－（メチルジエトキシシリル）プロピル］トリメチルアンモニウム、［３－（エチルジエトキシシリル）プロピル］トリメチルアンモニウム、［３－（プロピルジエトキシシリル）プロピル］トリメチルアンモニウム、［３－（ブチルジエトキシシリル）プロピル］トリメチルアンモニウム、［３－（メチルジプロポキシシリル）プロピル］トリメチルアンモニウム、［３－（エチルジプロポキシシリル）プロピル］トリメチルアンモニウム、［３－（プロピルジプロポキシシリル）プロピル］トリメチルアンモニウム、［３－（ブチルジプロポキシシリル）プロピル］トリメチルアンモニウム、［３－（メチルジブトキシシリル）プロピル］トリメチルアンモニウム、［３－（エチルジブトキシシリル）プロピル］トリメチルアンモニウム、［３－（プロピルジブトキシシリル）プロピル］トリメチルア

ンモニウム、［３－（ブチルジブトキシシリル）プロピル］トリメチルアンモニウム、などの［（アルキルジアルコキシシリル）プロピル［トリメチルアンモニウム、［３－（ジメチルメトキシシリル）プロピル］トリメチルアンモニウム、［３－（ジエチルメトキシシリル）プロピル］トリメチルアンモニウム、［３－（ジプロピルメトキシシリル）プロピル］トリメチルアンモニウム、［３－（ジブチルメトキシシリル）プロピル］トリメチルアンモニウム、［３－（ジメチルエトキシシリル）プロピル］トリメチルアンモニウム、［３－（ジエチルエトキシシリル）プロピル］トリメチルアンモニウム、［３－（ジプロピルエトキシシリル）プロピル］トリメチルアンモニウム、［３－［ジブチルエトキシシリル）プロピル］トリメチルアンモニウム、［３－（ジメチルプロポキシシリル）プロピル］トリメチルアンモニウム、［３－（ジエチルプロポキシシリル）プロピル］トリメチルアンモニウム、［３－（ジプロピルプロポキシシリル）プロピル］トリメチルアンモニウム、［３－（ジブチルプロポキシシリル）プロピル］トリメチルアンモニウム、［３－（ジメチルブトキシシリル）プロピル］トリメチルアンモニウム、［３－（ジエチルブトキシシリル）プロピル］トリメチルアンモニウム、［３－（ジプロピルブトキシシリル）プロピル］トリメチルアンモニウム、［３－（ジブチルブトキシシリル）プロピル］トリメチルアンモニウム、などの［（ジアルキルアルコキシシリル）プロピル］トリメチルアンモニウム、（３－アミノプロピル）トリクロロシラン、（３－アミノプロピル）トリブロモシラン、などの（３－アミノプロピル）トリハロシラン、［３－（２－アミノエチルアミノ）プロピル］トリメトキシシラン、［３－（６－アミノヘキシルアミノ）プロピル］トリメトキシシラン、などの［（アミノアルキルアミノ）プロピル］トリアルコキシシラン、［３－（２－アミノエチルアミノ）プロピル］メチルジメトキシシラン、［３－（６－アミノヘキシルアミノ）プロピル］メチルジメトキシシラン、などの［（アミノアルキルアミノ）プロピル］アルキルジアルコキシシラン、［３－（２－アミノエチルアミノ）プロピル］ジメチルメトキシシラン、［３－（６－アミノヘキシル

アミノ）プロピル］ジメチルメトキシシラン、などの［（アミノアルキルアミノ）プロピル］ジアルキルアルコキシシランが挙げられる。

[0033] これらアミノ基を有するシランカップリング剤の中でも、原料シリカとの反応性および安定性の観点から、（３－アミノプロピル）トリエトキシシラン、（３－アミノプロピル）エチルジエトキシシラン、（３－アミノプロピル）ジエチルエトキシシランが好ましい。

[0034] また、ハロゲノ基を有するシランカップリング剤は、特に制限されない。クロロ基を有するシランカップリング剤の具体例としては、例えば、（３－クロロプロピル）トリメトキシシラン、（３－クロロプロピル）トリエトキシシラン、（３－クロロプロピル）トリプロポキシシラン、（３－クロロプロピル）トリブトキシシラン、などの（クロロプロピル）トリアルコキシシラン、（３－クロロプロピル）メチルジメトキシシラン、（３－クロロプロピル）メチルジエトキシシラン、（３－クロロプロピル）メチルジプロポキシシラン、（３－クロロプロピル）メチルジブトキシシラン、（３－クロロプロピル）エチルジメトキシシラン、（３－クロロプロピル）エチルジエトキシシラン、（３－クロロプロピル）エチルジプロポキシシラン、（３－クロロプロピル）エチルジブトキシシラン、（３－クロロプロピル）プロピルジメトキシシラン、（３－クロロプロピル）プロピルジエトキシシラン、（３－クロロプロピル）プロピルジプロポキシシラン、（３－クロロプロピル）プロピルジブトキシシラン、（３－クロロプロピル）ブチルジメトキシシラン、（３－クロロプロピル）ブチルジエトキシシラン、（３－クロロプロピル）ブチルジプロポキシシラン、（３－クロロプロピル）ブチルジブトキシシラン、などの（クロロプロピル）アルキルジアルコキシシラン、（３－クロロプロピル）ジメチルメトキシシラン、（３－クロロプロピル）ジエチルメトキシシラン、（３－クロロプロピル）ジプロピルメトキシシラン、（３－クロロプロピル）ジブチルメトキシシラン、（３－クロロプロピル）ジメチルエトキシシラン、（３－クロロプロピル）ジエチルエトキシシラン、（３－クロロプロピル）ジプロピルエトキシシラン、（３－クロロプロピル

）ジブチルエトキシシラン、（３－クロロプロピル）ジメチルプロポキシシラン、（３－クロロプロピル）ジエチルプロポキシシラン、（３－クロロプロピル）ジプロピルプロポキシシラン、（３－クロロプロピル）ジブチルプロポキシシラン、（３－クロロプロピル）ジメチルブトキシシラン、（３－クロロプロピル）ジエチルブトキシシラン、（３－クロロプロピル）ジプロピルブトキシシラン、（３－クロロプロピル）ジブチルブトキシシラン、などの（クロロプロピル）ジアルキルアルコキシシラン、（３－クロロプロピル）トリクロロシラン、（３－クロロプロピル）トリブロモシラン、などの（３－クロロプロピル）トリハロシラン、（３－クロロフェニル）トリメトキシシラン、（４－クロロフェニル）トリメトキシシラン、（３－クロロフェニル）トリエトキシシラン、（４－クロロフェニル）トリエトキシシラン、（３－クロロフェニル）トリプロポキシシラン、（４－クロロフェニル）トリプロポキシシラン、（３－クロロフェニル）トリブトキシシラン、（４－クロロフェニル）トリブトキシシラン、などの（クロロフェニル）トリアルコキシシラン、（３－クロロフェニル）メチルジメトキシシラン、（４－クロロフェニル）メチルジメトキシシラン、（３－クロロフェニル）メチルジエトキシシラン、（４－クロロフェニル）メチルジエトキシシラン、（３－クロロフェニル）メチルジプロポキシシラン、（４－クロロフェニル）メチルジプロポキシシラン、（３－クロロフェニル）メチルジブトキシシラン、（４－クロロフェニル）メチルジブトキシシラン、（３－クロロフェニル）エチルジメトキシシラン、（４－クロロフェニル）エチルジメトキシシラン、（３－クロロフェニル）エチルジエトキシシラン、（４－クロロフェニル）エチルジエトキシシラン、（３－クロロフェニル）エチルジプロポキシシラン、（４－クロロフェニル）エチルジプロポキシシラン、（３－クロロフェニル）エチルジブトキシシラン、（４－クロロフェニル）エチルジブトキシシラン、（３－クロロフェニル）プロピルジメトキシシラン、（４－クロロフェニル）プロピルジメトキシシラン、（３－クロロフェニル）プロピルジエトキシシラン、（４－クロロフェニル）プロピルジエトキシシラン、

（３－クロロフェニル）プロピルジプロポキシシラン、（４－クロロフェニル）プロピルジプロポキシシラン、（３－クロロフェニル）プロピルジブトキシシラン、（４－クロロフェニル）プロピルジブトキシシラン、（３－クロロフェニル）ブチルジメトキシシラン、（４－クロロフェニル）ブチルジメトキシシラン、（３－クロロフェニル）ブチルジエトキシシラン、（４－クロロフェニル）ブチルジエトキシシラン、（３－クロロフェニル）ブチルジプロポキシシラン、（４－クロロフェニル）ブチルジプロポキシシラン、（３－クロロフェニル）ブチルジブトキシシラン、（４－クロロフェニル）ブチルジブトキシシラン、などの（クロロフェニル）アルキルジアルコキシシラン、（３－クロロフェニル）ジメチルメトキシシラン、（４－クロロフェニル）ジメチルメトキシシラン、（３－クロロフェニル）ジエチルメトキシシラン、（４－クロロフェニル）ジエチルメトキシシラン、（３－クロロフェニル）ジプロピルメトキシシラン、（４－クロロフェニル）ジプロピルメトキシシラン、（３－クロロフェニル）ジブチルメトキシシラン、（４－クロロフェニル）ジブチルメトキシシラン、（３－クロロフェニル）ジメチルエトキシシラン、（４－クロロフェニル）ジメチルエトキシシラン、（３－クロロフェニル）ジエチルエトキシシラン、（４－クロロフェニル）ジエチルエトキシシラン、（３－クロロフェニル）ジプロピルエトキシシラン、（４－クロロフェニル）ジプロピルエトキシシラン、（３－クロロフェニル）ジブチルエトキシシラン、（４－クロロフェニル）ジブチルエトキシシラン、（３－クロロフェニル）ジメチルプロポキシシラン、（４－クロロフェニル）ジメチルプロポキシシラン、（３－クロロフェニル）ジエチルプロポキシシラン、（４－クロロフェニル）ジエチルプロポキシシラン、（３－クロロフェニル）ジプロピルプロポキシシラン、（４－クロロフェニル）ジプロピルプロポキシシラン、（３－クロロフェニル）ジブチルプロポキシシラン、（４－クロロフェニル）ジブチルプロポキシシラン、（３－クロロフェニル）ジメチルブトキシシラン、（４－クロロフェニル）ジメチルブトキシシラン、（３－クロロフェニル）ジエチルブトキシシラン、（４－クロロフ

ェニル）ジエチルブトキシシラン、（３－クロロフェニル）ジプロピルブトキシシラン、（４－クロロフェニル）ジプロピルブトキシシラン、（３－クロロフェニル）ジブチルブトキシシラン、（４－クロロフェニル）ジブチルブトキシシラン、などの（クロロフェニル）ジアルキルアルコキシシラン、（３－クロロフェニル）トリクロロシラン、（４－クロロフェニル）トリクロロシラン、（３－クロロフェニル）トリブロモシラン、（４－クロロフェニル）トリブロモシラン、などの（クロロフェニル）トリハロシラン、が挙げられる。

[0035] また、ブロモ基を有するシランカップリング剤の具体例としては、例えば、（３－ブロモプロピル）トリメトキシシラン、（３－ブロモプロピル）トリエトキシシラン、（３－ブロモプロピル）トリプロポキシシラン、（３－ブロモプロピル）トリブトキシシラン、などの（ブロモプロピル）トリアルコキシシラン、（３－ブロモプロピル）メチルジメトキシシラン、（３－ブロモプロピル）メチルジエトキシシラン、（３－ブロモプロピル）メチルジプロポキシシラン、（３－ブロモプロピル）メチルジブトキシシラン、（３－ブロモプロピル）エチルジメトキシシラン、（３－ブロモプロピル）エチルジエトキシシラン、（３－ブロモプロピル）エチルジプロポキシシラン、（３－ブロモプロピル）エチルジブトキシシラン、（３－ブロモプロピル）プロピルジメトキシシラン、（３－ブロモプロピル）プロピルジエトキシシラン、（３－ブロモプロピル）プロピルジプロポキシシラン、（３－ブロモプロピル）プロピルジブトキシシラン、（３－ブロモプロピル）ブチルジメトキシシラン、（３－ブロモプロピル）ブチルジエトキシシラン、（３－ブロモプロピル）ブチルジプロポキシシラン、（３－ブロモプロピル）ブチルジブトキシシラン、などの（ブロモプロピル）アルキルジアルコキシシラン、（３－ブロモプロピル）ジメチルメトキシシラン、（３－ブロモプロピル）ジエチルメトキシシラン、（３－ブロモプロピル）ジプロピルメトキシシラン、（３－ブロモプロピル）ジブチルメトキシシラン、（３－ブロモプロピル）ジメチルエトキシシラン、（３－ブロモプロピル）ジエチルエトキシ

シラン、（３－ブロモプロピル）ジプロピルエトキシシラン、（３－ブロモプロピル）ジブチルエトキシシラン、（３－ブロモプロピル）ジメチルプロポキシシラン、（３－ブロモプロピル）ジエチルプロポキシシラン、（３－ブロモプロピル）ジプロピルプロポキシシラン、（３－ブロモプロピル）ジブチルプロポキシシラン、（３－ブロモプロピル）ジメチルブトキシシラン、（３－ブロモプロピル）ジエチルブトキシシラン、（３－ブロモプロピル）ジプロピルブトキシシラン、（３－ブロモプロピル）ジブチルブトキシシラン、などの（ブロモプロピル）ジアルキルアルコキシシラン、（３－ブロモプロピル）トリクロロシラン、（３－ブロモプロピル）トリブロモシラン、などの（ブロモプロピル）トリハロシラン、（３－ブロモフェニル）トリメトキシシラン、（４－ブロモフェニル）トリメトキシシラン、（３－ブロモフェニル）トリエトキシシラン、（４－ブロモフェニル）トリエトキシシラン、（３－ブロモフェニル）トリプロポキシシラン、（４－ブロモフェニル）トリプロポキシシラン、（３－ブロモフェニル）トリブトキシシラン、（４－ブロモフェニル）トリブトキシシラン、などの（ブロモフェニル）トリアルコキシシラン、（３－ブロモフェニル）メチルジメトキシシラン、（４－ブロモフェニル）メチルジメトキシシラン、（３－ブロモフェニル）メチルジエトキシシラン、（４－ブロモフェニル）メチルジエトキシシラン、（３－ブロモフェニル）メチルジプロポキシシラン、（４－ブロモフェニル）メチルジプロポキシシラン、（３－ブロモフェニル）メチルジブトキシシラン、（４－ブロモフェニル）メチルジブトキシシラン、（３－ブロモフェニル）エチルジメトキシシラン、（４－ブロモフェニル）エチルジメトキシシラン、（３－ブロモフェニル）エチルジエトキシシラン、（４－ブロモフェニル）エチルジエトキシシラン、（３－ブロモフェニル）エチルジプロポキシシラン、（４－ブロモフェニル）エチルジプロポキシシラン、（３－ブロモフェニル）エチルジブトキシシラン、（４－ブロモフェニル）エチルジブトキシシラン、（３－ブロモフェニル）プロピルジメトキシシラン、（４－ブロモフェニル）プロピルジメトキシシラン、（３－ブロモフェニル）プ

ロピルジエトキシシラン、（４－ブロモフェニル）プロピルジエトキシシラン、（３－ブロモフェニル）プロピルジプロポキシシラン、（４－ブロモフェニル）プロピルジプロポキシシラン、（３－ブロモフェニル）プロピルジブトキシシラン、（４－ブロモフェニル）プロピルジブトキシシラン、（３－ブロモフェニル）ブチルジメトキシシラン、（４－ブロモフェニル）ブチルジメトキシシラン、（３－ブロモフェニル）ブチルジエトキシシラン、（４－ブロモフェニル）ブチルジエトキシシラン、（３－ブロモフェニル）ブチルジプロポキシシラン、（４－ブロモフェニル）ブチルジプロポキシシラン、（３－ブロモフェニル）ブチルジブトキシシラン、（４－ブロモフェニル）ブチルジブトキシシラン、などの（ブロモフェニル）アルキルジアルコキシシラン、（３－ブロモフェニル）ジメチルメトキシシラン、（４－ブロモフェニル）ジメチルメトキシシラン、（３－ブロモフェニル）ジメチルエトキシシラン、（４－ブロモフェニル）ジメチルエトキシシラン、（３－ブロモフェニル）ジメチルプロポキシシラン、（４－ブロモフェニル）ジメチルプロポキシシラン、（３－ブロモフェニル）ジメチルブトキシシラン、（４－ブロモフェニル）ジメチルブトキシシラン、（３－ブロモフェニル）ジエチルメトキシシラン、（４－ブロモフェニル）ジエチルメトキシシラン、（３－ブロモフェニル）ジエチルエトキシシラン、（４－ブロモフェニル）ジエチルエトキシシラン、（３－ブロモフェニル）ジエチルプロポキシシラン、（４－ブロモフェニル）ジエチルプロポキシシラン、（３－ブロモフェニル）ジエチルブトキシシラン、（４－ブロモフェニル）ジエチルブトキシシラン、（３－ブロモフェニル）ジプロピルメトキシシラン、（４－ブロモフェニル）ジプロピルメトキシシラン、（３－ブロモフェニル）ジプロピルエトキシシラン、（４－ブロモフェニル）ジプロピルエトキシシラン、（３－ブロモフェニル）ジプロピルプロポキシシラン、（４－ブロモフェニル）ジプロピルプロポキシシラン、（３－ブロモフェニル）ジプロピルブトキシシラン、（４－ブロモフェニル）ジプロピルブトキシシラン、（３－ブロモフェニル）ジブチルメトキシシラン、（４－ブロモフェニル）ジブチルメト

キシシラン、（３－ブロモフェニル）ジブチルエトキシシラン、（４－ブロモフェニル）ジブチルエトキシシラン、（３－ブロモフェニル）ジブチルプロポキシシラン、（４－ブロモフェニル）ジブチルプロポキシシラン、（３－ブロモフェニル）ジブチルブトキシシラン、（４－ブロモフェニル）ジブチルブトキシシラン、などの（ブロモフェニル）ジアルキルアルコキシシラン、（３－ブロモフェニル）トリクロロシラン、（４－ブロモフェニル）トリクロロシラン、（３－ブロモフェニル）トリブロモシラン、（４－ブロモフェニル）トリブロモシラン、などの（ブロモフェニル）トリハロシラン、が挙げられる。

[0036] フルオロ基またはヨード基を有するシランカップリング剤については、上記のクロロ基またはブロモ基を有するシランカップリング剤の具体例として挙げた化合物中の塩素原子またはブロモ原子を、それぞれフッ素原子またはヨウ素原子へと置き換えたシランカップリング剤を使用することができる。

[0037] これらハロゲノ基を有するシランカップリング剤の中でも、原料シリカとの反応性および安定性の観点から、（３－クロロプロピル）トリメトキシシラン、（３－クロロプロピル）トリエトキシシラン、（３－ブロモプロピル）トリメトキシシラン、（３－ブロモプロピル）トリエトキシシランが好ましい。

[0038] なお、上記シランカップリング剤は、単独でもまたは２種以上を併用してもよい。

[0039] 上記シランカップリング剤は市販品を用いてもよいし、合成品を用いてもよい。例えば、アミノ基を有するシランカップリング剤を合成する方法は、特に制限されず、例えば、（３－ブロモプロピル）トリメトキシシラン等のハロゲン含有シラン化合物と、上記アミノ基を有する化合物とを、硫酸等の酸触媒存在下、トルエン、キシレン等の溶媒中で反応させる公知の方法が挙げられる。

[0040] 原料シリカとシランカップリング剤との合成反応に用いられる溶媒としては、特に制限されず、例えば、水や、その他にも有機溶媒としてメタノール

、エタノール、ｎ－プロパノール、イソプロピルアルコール等の低級アルコール類、アセトン、メチルエチルケトン等のケトン類、ジエチルエーテル、ジオキサン、テトラヒドロフラン等のエーテル類、Ｎ，Ｎ－ジメチルホルムアミド等のアミド類、ジメチルスルホキシド等のスルホキシド類等が挙げられる。この中で好ましくは有機溶媒である。これら溶媒は、単独でもまたは２種以上混合して用いてもよい。

[0041] 例えば、水分散のコロイダルシリカにシランカップリング剤を添加する場合は、シランカップリング剤が溶解する程度に親水性溶媒を加えることが好ましい。親水性有機溶媒としては、例えば、メタノール、エタノール、イソプロピルアルコール等のアルコールが挙げられる、この中でも、シランカップリング剤の加水分解により生成するアルコールと同種のアルコールを用いることが好ましい。これは、シランカップリング剤の加水分解により生成するアルコールと同種のアルコールを用いることにより、より容易に溶媒の回収、再利用を行うことができるからである。

[0042] 合成反応の際のシランカップリング剤の使用量の下限は、含有されるシリカのモル数（SiO_2を１分子とした場合のモル数）を１００モル％として、０．１モル％以上であることが好ましく、１モル％以上であることがより好ましく、１０モル％以上であることがさらに好ましい。合成反応の際のシランカップリング剤の使用量の上限は、原料シリカのモル数を１００モル％として、９０モル％以下であることが好ましく、８５モル％以下であることがより好ましく、８０モル％以下であることがさらに好ましい。この範囲であれば、酸性におけるゼータ電位が十分安定し、また、経時的に原料シリカがゲル化することを防止することができる。

[0043] なお、コロイダルシリカなどのコロイド状のシリカを原料として用いる場合、シリカ１９５ｇに対して、シランカップリング剤を５ｍｍｏｌを添加することで作成できる。シランカップリング剤の添加量はシリカ１９５ｇに対して３ｍｍｏｌ～１５ｍｍｏｌであることが好ましい。

[0044] 合成反応の際の雰囲気は特に限定されず、空気雰囲気下、窒素、アルゴン

などの不活性ガス雰囲気下、または真空下などで行うことができる。

[0045] 合成反応時のｐＨも、特に制限されないが、７以上１１以下が好ましい。この範囲であれば、シランカップリング剤が原料シリカと効率よく反応し、シランカップリング剤同士が自己縮合する虞を低減することができる。

[0046] 反応温度の下限は、特に制限されないが、５℃以上であることが好ましく、７℃以上であることがより好ましく、１０℃以上であることがさらに好ましい。また、反応温度の上限は、特に制限されないが、１００℃以下であることが好ましく、９５℃以下であることがより好ましく、９０℃以下であることがさらに好ましい。この範囲であれば、シランカップリング剤を効率よく原料シリカと反応させることができる。

[0047] 反応時間の下限は、特に制限されないが、１時間以上であることが好ましく、２時間以上であることがより好ましく、３時間以上であることがさらに好ましい。この範囲であれば、シランカップリング剤を効率よく原料シリカと反応させることができる。なお、反応時間の上限も特に制限されないが、作業性の観点から、通常２４時間以下である。

[0048] なお、該合成反応は、１段階で行ってもよく、また、反応温度を変えて２段階で行ってもよい。

[0049] 反応終了後、ロータリーエバポレータ等を用いて反応溶媒を減圧留去することにより、目的の特定の官能基が表面に固定化されてなるシリカを得ることができる。

[0050] 研磨用組成物中のシリカの含有量は、特に制限されないが、好ましくは０．０５質量％以上であり、より好ましくは０．１質量％以上であり、さらに好ましくは０．５質量％以上である。シリカの含有量が多くなるにつれて、研磨用組成物による研磨対象物の研磨レートが向上する利点がある。

[0051] また、研磨用組成物中のシリカの含有量は、特に制限されないが、好ましくは５０質量％以下であり、より好ましくは２５質量％以下であり、さらに好ましくは２０質量％以下である。シリカの含有量が少なくなるにつれて、製造コストを削減することができる。

[0052] ［ｐＨ調整剤］

本発明の研磨用組成物は、ｐＨを所望の値に調整するために、ｐＨ調整剤を含む。ｐＨ調整剤としては、下記のような酸またはアルカリが挙げられる。

[0053] 本発明の研磨用組成物において、ｐＨ調整剤は、酸およびアルカリのいずれであってもよく、また、無機化合物および有機化合物のいずれであってもよい。酸の具体例としては、例えば、硫酸、硝酸、ホウ酸、炭酸、次亜リン酸、亜リン酸およびリン酸等の無機酸；ギ酸、酢酸、プロピオン酸、酪酸、吉草酸、２－メチル酪酸、ｎ－ヘキサン酸、３，３－ジメチル酪酸、２－エチル酪酸、４－メチルペンタン酸、ｎ－ヘプタン酸、２－メチルヘキサン酸、ｎ－オクタン酸、２－エチルヘキサン酸、安息香酸、グリコール酸、サリチル酸、グリセリン酸、シュウ酸、マロン酸、コハク酸、グルタル酸、アジピン酸、ピメリン酸、マレイン酸、フタル酸、リンゴ酸、酒石酸、クエン酸および乳酸などのカルボン酸、ならびにメタンスルホン酸、エタンスルホン酸およびイセチオン酸等の有機硫酸等の有機酸等が挙げられる。アルカリの具体例としては、アンモニア、エチレンジアミンおよびピペラジンなどのアミン、ならびにテトラメチルアンモニウムおよびテトラエチルアンモニウムなどの第４級アンモニウム塩、水酸化カリウムおよび水酸化ナトリウムなどの金属水酸化物が挙げられる。これらｐＨ調節剤は、単独でもまたは２種以上混合しても用いることができる。

[0054] これらｐＨ調整剤の中でも、組成物の安定性の観点から、無機酸または金属水酸化物が好ましく、硝酸、硫酸、水酸化カリウムがより好ましい。

[0055] 本発明の研磨用組成物のｐＨは、好ましくは０．５以上であり、より好ましくは１以上であり、さらに好ましくは２以上である。ｐＨが上昇するにつれ、取扱いが容易になるという利点がある。

[0056] 本発明の研磨用組成物のｐＨは、好ましくは１２以下であり、より好ましくは１１．５以下であり、さらに好ましくは１１以下である。ｐＨが低下するにつれシリカの溶解を抑制できるという利点がある。

[0057] 研磨用組成物中のｐＨ調整剤の含有量は、特に制限されず、上記ｐＨの範囲となるように含有量を適宜選択すればよい。

[0058] ［分散媒または溶媒］

本発明の研磨用組成物は、分散媒または溶媒を含有してもよい。分散媒または溶媒としては有機溶媒、水が考えられるが、その中でも水を含むことが好ましい。他の成分の作用を阻害するという観点から、不純物をできる限り含有しない水が好ましい。具体的には、イオン交換樹脂にて不純物イオンを除去した後フィルタを通して異物を除去した純水や超純水、または蒸留水が好ましい。

[0059] ［他の成分］

本発明の研磨用組成物は、必要に応じて、上述の特定の官能基が表面に固定化されてなるシリカ以外の砥粒（以下、「その他の砥粒」とも称する）、錯化剤、金属防食剤、防腐剤、防カビ剤、酸化剤、還元剤、界面活性剤等の他の成分をさらに含んでもよい。以下、その他の砥粒、酸化剤、防腐剤、防カビ剤について説明する。

[0060] （その他の砥粒）

上記シリカ以外の砥粒は、無機粒子、有機粒子、および有機無機複合粒子のいずれであってもよい。無機粒子の具体例としては、例えばシリカ（ただし、上述の特定の官能基が表面に固定化されたものを除く）、アルミナ、セリア、チタニア等の金属酸化物からなる粒子、窒化ケイ素粒子、炭化ケイ素粒子、窒化ホウ素粒子が挙げられる。有機粒子の具体例としては、例えば、ポリメタクリル酸メチル（ＰＭＭＡ）粒子が挙げられる。その他の砥粒は、単独でもまたは２種以上混合して用いてもよい。また、その他の砥粒は、市販品を用いてもよいし合成品を用いてもよい。

[0061] （酸化剤）

酸化剤は、研磨対象物の表面を酸化し、研磨用組成物による研磨対象物の研磨レートを向上させる。

[0062] 酸化剤としては、例えば過酸化物が挙げられる。過酸化物の具体例として

は、過酸化水素、過酢酸、過炭酸塩、過酸化尿素、過塩素酸及び過ヨウ素酸等の過ハロゲン酸、ならびに過硫酸ナトリウム、過硫酸カリウム、過硫酸アンモニウム等の過硫酸塩が挙げられる。これら酸化剤は、単独でもまたは２種以上混合して用いてもよい。中でも研磨対象物表面との反応性の観点から、過硫酸塩および過酸化水素が好ましく、過酸化水素が特に好ましい。

[0063] 研磨用組成物中の酸化剤の含有量は、好ましくは０．０１質量％以上であり、より好ましくは０．１質量％以上であり、さらに好ましくは０．３質量％以上である。酸化剤の含有量が多くになるにつれて、研磨対象物の研磨レートがより向上する。

[0064] また、研磨用組成物中の酸化剤の含有量は、好ましくは２０質量％以下であり、より好ましくは１０質量％以下であり、さらに好ましくは４質量％以下である。酸化剤の含有量が少なくなるにつれて、研磨用組成物の材料コストを抑えることができるのに加え、研磨使用後の研磨用組成物の処理、すなわち廃液処理の負荷を軽減することができる。また、酸化剤による研磨対象物表面の過剰な酸化が起こる虞を少なくすることもできる。

[0065] （防腐剤または防カビ剤）

防腐剤または防カビ剤としては、例えば、２－メチル－４－イソチアゾリン－３－オンや５－クロロ－２－メチル－４－イソチアゾリン－３－オン等のイソチアゾリン系防腐剤、パラオキシ安息香酸エステル類、及びフェノキシエタノール等が挙げられる。これら防腐剤または防カビ剤は、単独でもまたは２種以上混合して用いてもよい。

[0066] 本発明の研磨用組成物は一液型であってもよいし、二液型をはじめとする多液型であってもよい。また、本発明の研磨用組成物は、研磨用組成物の原液を水などの希釈液を使って例えば１０倍以上に希釈することによって調整し使用されてもよい。

[0067] ＜研磨用組成物の製造方法＞

本発明の研磨用組成物の製造方法は、特に制限されず、例えば、特定の官能基が表面に固定化されてなるシリカ、ｐＨ調整剤、および必要に応じて他

の成分を、攪拌混合して得ることができる。すなわち、本発明の他の一形態に係る研磨用組成物の製造方法は、下記条件（１）および（２）の少なくとも１つを満たす官能基が表面に固定化されてなるシリカと、ｐＨ調整剤とを混合することを含む；条件（１）：前記官能基がアミノ基を有する、条件（２）：前記官能基がハロゲノ基を有する。

[0068] 各成分を混合する際の温度は特に制限されないが、１０～４０℃が好ましく、溶解速度を上げるために加熱してもよい。

[0069] ＜研磨用組成物の用途＞

本発明の研磨用組成物は、Ｓｉ含有材料を含む層を有する研磨対象物を研磨するのに好適である。Ｓｉ含有材料としては、単結晶シリコン、多結晶シリコン（ｐｏｌｙ－Ｓｉ）、シリコン酸化物、およびシリコン窒化物といったものが挙げられるが、中でも、本発明の効果がより効率的に得られるという観点から、Ｓｉ含有材料は、多結晶シリコンまたはシリコン窒化物を含むことが好ましく、シリコン窒化物を含むことがより好ましく、多結晶シリコンおよびシリコン窒化物を含むことがさらに好ましい。

[0070] また本発明の研磨用組成物は、特に、条件（１）（官能基がアミノ基を有する）を満たす場合において、貴金属を含む層を有する研磨対象物を研磨するのに好適である。貴金属としては、金（Ａｕ）、銀（Ａｇ）、白金（Ｐｔ）、パラジウム（Ｐｄ）、ロジウム（Ｒｈ）、ルテニウム（Ｒｕ）、イリジウム（Ｉｒ）、およびオスミウム（Ｏｓ）といったものが挙げられる。中でも、これまで高い研磨レートを発現することができなかった、ルテニウム（ルテニウム単体、ルテニウム合金及びルテニウム化合物を含む）であることが好ましい。

[0071] 現在、高速ロジックデバイスにおけるダマシン配線には、銅が配線金属として主に用いられている。そして、銅あるいは銅合金等からなる配線の下層には、層間絶縁膜中への銅拡散防止のために、タンタル、タンタル合金、またはタンタル化合物等からなるバリア層が形成されることが多かったが、近年、バリア層の材料として、ルテニウム、ルテニウム合金、またはルテニウ

ム化合物が検討されている。ルテニウム、ルテニウム合金、またはルテニウム化合物は、タンタル、タンタル合金、またはタンタル化合物に比べ抵抗率が低く、化学的気相成長（ＣＶＤ）製膜が可能でより細幅配線に対応可能な点で優れている。しかし、ルテニウム、ルテニウム合金、またはルテニウム化合物は銅のような他のダマシン配線金属膜よりも化学的に安定かつ硬度が高いことから研磨が難しいという問題点があった。例えば、特開２００８－０３４８１８号公報にルテニウム膜研磨用組成物について開示されているが、研磨レートとしてはまだ十分ではなかった。

[0072] 本発明の研磨用組成物を用いることにより、ルテニウム、ルテニウム合金及びルテニウム化合物を研磨する際には高研磨レートを発現させることができる詳細な理由は不明であるが、以下のメカニズムによると推測される。なお、本発明は以下のメカニズムに何ら制限されるものではない。

[0073] シリカ表面にアミノ基を有する官能基が固定化されることによって、研磨対象物であるルテニウムとアミノ基とが求核付加反応を起こし、ルテニウムとアミノ基とが結合する。するとルテニウム同士の金属結合が弱まり、結合が切れやすくなる。その結果、高い研磨レートが発現するものと推測される。

[0074] 本発明の研磨用組成物は、上記研磨対象物を含む被研磨材料以外の研磨に用いられてもよい。このような被研磨材料の例としては、基板に形成されたガラス等の無機絶縁層、Ａｌ、Ｃｕ、Ｔｉ、Ｗ、Ｔａ等を主成分として含有する層、フォトマスク・レンズ・プリズム等の光学ガラス、ＩＴＯ等の無機導電層、ガラス及び結晶質材料で構成される光集積回路・光スイッチング素子・光導波路、光ファイバーの端面、シンチレータ等の光学用単結晶、固体レーザ単結晶、青色レーザＬＥＤ用サファイヤ基板、ＧａＰ、ＧａＡｓ等の半導体単結晶、磁気ディスク用ガラス基板、磁気ヘッド等が挙げられる。

[0075] ＜研磨方法、基板の製造方法＞

本発明の一形態によると、研磨対象物を有する被研磨材料を上記研磨用組成物を用いて研磨する工程を含む研磨方法が提供される。また、本発明の他

の一形態によると、上記研磨方法で研磨する工程を含む、基板の製造方法が提供される。

[0076] 本発明の研磨用組成物を用いて、被研磨材料を研磨する際には、通常の金属研磨に用いられる装置や条件を用いて行うことができる。一般的な研磨装置としては、片面研磨装置や両面研磨装置がある。片面研磨装置では、キャリアと呼ばれる保持具を用いて基板を保持し、上方より研磨用組成物を供給しながら、基板の対向面に研磨パッドが貼付した定盤を押し付けて定盤を回転させることにより被研磨材料の片面を研磨する。このとき、研磨パッドおよび研磨用組成物と、被研磨材料との摩擦による物理的作用と、研磨用組成物が被研磨材料にもたらす化学的作用とによって研磨される。研磨パッドとしては、不織布、ポリウレタン、スウェード等の多孔質体を特に制限なく使用することができる。研磨パッドには、研磨液が溜まるような加工が施されていることが好ましい。

[0077] 本発明の研磨方法における研磨条件として、研磨荷重、定盤回転数、キャリア回転数、研磨用組成物の流量、研磨時間が挙げられる。これらの研磨条件に特に制限はないが、例えば、研磨荷重については、基板の単位面積当たり０．１ｐｓｉ以上１０ｐｓｉ以下であることが好ましく、より好ましくは０．５以上８．０ｐｓｉ以下であり、さらに好ましくは１．０ｐｓｉ以上６．０ｐｓｉ以下である（この際、１ｐｓｉ＝６８９４．７５７Ｐａとして換算する）。一般に荷重が高くなればなるほど砥粒による摩擦力が高くなり、機械的な加工力が向上するため研磨レートが上昇する。この範囲であれば、十分な研磨レートが発揮され、荷重による基板の破損や、表面に傷などの欠陥が発生することを抑制することができる。定盤回転数、およびキャリア回転数は、１０～５００ｒｐｍであることが好ましい。研磨用組成物の供給量は、被研磨材料の基盤全体が覆われる供給量であればよく、基板の大きさなどの条件に応じて調整すればよい。

実施例

[0078] 本発明を、以下の実施例および比較例を用いてさらに詳細に説明する。た

だし、本発明の技術的範囲が以下の実施例のみに制限されるわけではない。

[0079] ［実施例１～５、比較例１～３］

（アミノ基を有する官能基が表面に固定されてなるシリカ（シリカＡ）の合成）

原料シリカとして、コロイダルシリカ水溶液１０００ｇ（濃度１９．５質量％、平均一次粒子径が３５ｎｍ、平均二次粒子径が６８ｎｍ）を準備した。別途、シランカップリング剤である（３－アミノプロピル）トリエトキシシランを５ｍｍｏｌ（１．１２ｇ）秤量し、メタノール５０ｇに溶解させた。

[0080] コロイダルシリカ水溶液を空気雰囲気下、２５℃で、攪拌翼の回転数６００ｒｐｍで攪拌しながら、上記シランカップリング剤のメタノール溶液を、１ｍｌ／ｍｉｎの速度で滴下した。滴下後、溶液のｐＨが８．０～９．０になるように、ｐＨ調整剤（ＫＯＨ）を用いてｐＨを調整した。

[0081] ｐＨ調整後、溶液を４０℃のエアバスで８時間静置し、その後、６０℃のエアバスで１２時間静置した。その後、ロータリー式エバポレータにて、メタノールを取り除き、シリカＡを得た。

[0082] 得られたシリカＡについて、ＸＰＳ（Ｘ線光電子分光）分析を行うことにより、原料シリカとアミノ基を有する官能基とを結合するＳｉ－Ｏ－Ｓｉの化学結合が形成されていることを確認した。さらに、得られたシリカＡについて、ＦＴ－ＩＲ（フーリエ変換型赤外分光）分析を行うことにより、アミノ基を有していることを確認した。したがって、この２つの分析方法により、シリカＡは、シリカの表面にアミノ基を有する官能基が固定化されてなることを確認した。

[0083] （ハロゲノ基を有する官能基が表面に固定されてなるシリカ（シリカＣ）の合成）

原料シリカとして、コロイダルシリカ水溶液１０００ｇ（濃度１９．５質量％、平均一次粒子径が３５ｎｍ、平均二次粒子径が６８ｎｍ）を準備した。別途、シランカップリング剤である（３－ブロモプロピル）トリメトキシ

シランを５ｍｍｏｌ（１．２２ｇ）秤量し、メタノール５０ｇに溶解させた。

[0084] コロイダルシリカ水溶液を空気雰囲気下、２５℃で、攪拌翼の回転数６００ｒｐｍで攪拌しながら、上記シランカップリング剤のメタノール溶液を、１ｍｌ／ｍｉｎの速度で滴下した。滴下後、溶液のｐＨが８．０～９．０になるように、ｐＨ調整剤（ＫＯＨ）を用いてｐＨを調整した。

[0085] ｐＨ調整後、溶液を４０℃のエアバスで８時間静置し、その後、６０℃のエアバスで１２時間静置した。その後、ロータリー式エバポレータにて、メタノールを取り除き、シリカＣを得た。

[0086] 得られたシリカＣについて、ＸＰＳ（Ｘ線光電子分光）分析を行うことにより、原料シリカとハロゲノ基を有する官能基とを結合するＳｉ－Ｏ－Ｓｉの化学結合が形成されていることを確認した。さらに、得られたシリカＣについて、ＦＴ－ＩＲ（フーリエ変換型赤外分光）分析を行うことにより、ハロゲノ基を有していることを確認した。したがって、この２つの分析方法により、シリカＣは、シリカの表面にハロゲノ基を有する官能基が固定化されなることを確認した。

[0087] （研磨用組成物の調製）

研磨用組成物を、下記表１～４に示す組成で、砥粒（シリカ）、ｐＨ調整剤、酸化剤を超純水中で混合することにより調製した（混合温度：約２５℃、混合時間：約１０分）。研磨用組成物のｐＨは、ｐＨメータにより確認した。表中の「－」は未添加であることを示す。

[0088] なお、表１～４に示すシリカＢはアミノ基を有する官能基が表面に固定化される前の原料シリカ（コロイダルシリカ；平均一次粒子径が３５ｎｍ、平均二次粒子径が６８ｎｍ）である。

[0089] （研磨性能評価）

得られた研磨用組成物を用い、研磨対象物を以下の研磨条件で研磨した際の研磨レートを測定した。

[0090] なお、表１～４の研磨レートの欄は、シリコン窒化物（ＳｉＮ）、多結晶

シリコン（Ｐｏｌｙ－Ｓｉ）またはルテニウム（Ｒｕ）の研磨レートを測定した結果を示す。

[0091] ・研磨条件

研磨機：　２００ｍｍ用片面ＣＭＰ研磨機

パッド：　ポリウレタン製パッド

圧力：　２．５ｐｓｉ（１７．２ＫＰａ）

定盤回転数：　６０ｒｐｍ

キャリア回転数：　４０ｒｐｍ

研磨用組成物の流量：　１００ｍｌ／ｍｉｎ

研磨時間：１分間。

[0092] 研磨レートは、以下の式により計算した。

[0093] [数1]

$$\text{研磨レート[Å/min]} = \frac{\text{研磨前の膜厚[Å]} - \text{研磨後の膜厚[Å]}}{\text{研磨時間[min]}}$$

[0094] ＳｉＮ及びＰｏｌｙ－Ｓｉについては膜厚を光干渉式膜厚測定装置によって求めて、その差を研磨時間で除することにより評価した。Ｒｕについては膜厚を直流４探針法によるシート抵抗の測定から求めて、その差を研磨時間で除することにより評価した。

[0095] 研磨レートの測定結果を下記表１～４に示す。なお、本発明においては、Ｐｏｌｙ－Ｓｉの研磨レートをＳｉＮの研磨レートで除した選択比（Ｐｏｌｙ－Ｓｉ／ＳｉＮ）が１以上であることが好ましく、さらに５以上であることがより好ましい。

[0096] [表1]

	砥粒		pH調整剤		酸化剤		pH	研磨レート（Å／min）	
	砥粒	濃度（質量%）	pH調整剤	濃度（質量%）	酸化剤	濃度（質量%）		SiN	Poly-Si
実施例1	シリカA	10	硝酸	0.7	—	—	3	6	53
比較例1	シリカB	10	硝酸	0.7	—	—	3	43	40

[0097]

[表2]

	砥粒		pH調整剤		酸化剤		pH	研磨レート（Å／min）
	砥粒	濃度（質量％）	pH調整剤	濃度（質量％）	酸化剤	濃度（質量％）		Ru
実施例２	シリカA	１０	硝酸	０．７	過酸化水素	０．３４	３	１４２
比較例２	シリカB	１０	硝酸	０．７	過酸化水素	０．３４	３	１２９

[0098] [表3]

	砥粒		pH調整剤		酸化剤		pH	研磨レート（Å／min）
	砥粒	濃度（質量％）	pH調整剤	濃度（質量％）	酸化剤	濃度（質量％）		Ru
実施例３	シリカA	１０	水酸化カリウム	０．７	過酸化水素	０．３４	１０	２４９
比較例３	シリカB	１０	水酸化カリウム	０．７	過酸化水素	０．３４	１０	１４０

[0099] [表4]

	砥粒		pH調整剤		pH	研磨レート（Å／min）		選択比 Poly－Si／SiN
	砥粒種	濃度（質量％）	pH調整剤	濃度（質量％）		Poly－Si	SiN	
実施例４	シリカC	１０	硝酸	０．７	３	５３	６	８．８
実施例５	シリカC	１０	水酸化カリウム	０．７	１０	８３８	５６	１５．０
比較例１	シリカB	１０	硝酸	０．７	３	４０	４３	０．９
比較例３	シリカB	１０	水酸化カリウム	０．７	１０	５９	２１	２．８

[0100] 上記表１の研磨レートの結果から明らかなように、実施例１と比較例１を比べると、実施例１においてＳｉＮに対する研磨レートが抑制されていること確認された。特に、実施例１では、ＳｉＮに対するＰｏｌｙ－Ｓｉの研磨選択性が高い（選択比＝８．８）ことが示された。同様に、上記表４の研磨レートの結果から明らかなように、実施例４および５と比較例１および３を比べると、実施例４および５の方がＳｉＮに対するＰｏｌｙ－Ｓｉの研磨選択性が高いことが確認された。したがって、本発明の研磨用組成物によると、Ｓｉ含有材料の研磨レートを十分に制御することができることが示された。

[0101] また、上記表２の研磨レートの結果から、実施例２と比較例２を比べると、実施例２においてＲｕの研磨レートが上昇していることが確認された。さらに、上記表３の研磨レートの結果から、実施例３と比較例３を比べると、実施例３においてＲｕの研磨レートが上昇していることが確認された。したがって、本発明の研磨用組成物は、ルテニウムを研磨する際には高研磨レー

トを発現させることができることが示された。

請求の範囲

[請求項1] 下記条件（１）および（２）の少なくとも１つを満たす官能基が表面に固定化されてなるシリカと、ｐＨ調整剤とを含む研磨用組成物；

条件（１）：前記官能基がアミノ基を有する、

条件（２）：前記官能基がハロゲノ基を有する。

[請求項2] 前記条件（２）を満たす場合において、前記ハロゲノ基がフルオロ基、クロロ基、ブロモ基、およびヨード基からなる群より選択される少なくとも１つを含む、請求項１に記載の研磨用組成物。

[請求項3] Ｓｉ含有材料を含む層を有する研磨対象物を研磨する用途で使用される、請求項１または２に記載の研磨用組成物。

[請求項4] 前記Ｓｉ含有材料は、単結晶シリコン、多結晶シリコン、シリコン酸化物、およびシリコン窒化物からなる群より選択される少なくとも１つを含む、請求項３記載の研磨用組成物。

[請求項5] 前記条件（１）を満たす場合において、貴金属を含む層を有する研磨対象物を研磨する用途で使用される、請求項１に記載の研磨用組成物。

[請求項6] 前記貴金属が、金、銀、白金、パラジウム、ロジウム、ルテニウム、イリジウム、およびオスミウムからなる群より選択される少なくとも１つを含む、請求項５記載の研磨用組成物

[請求項7] 研磨対象物を有する被研磨材料を請求項１～６のいずれか１項に記載の研磨用組成物を用いて研磨する工程を含む、研磨方法。

[請求項8] 請求項７に記載の研磨方法で研磨する工程を含む、基板の製造方法。

[請求項9] 下記条件（１）および（２）の少なくとも１つを満たす官能基が表面に固定化されてなるシリカと、ｐＨ調整剤とを混合することを含む研磨用組成物の製造方法；

条件（１）：前記官能基がアミノ基を有する、

条件（２）：前記官能基がハロゲノ基を有する。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2014/071209

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
C09K3/14(2006.01)i, *B24B37/00*(2012.01)i, *C09G1/02*(2006.01)i, *H01L21/304*(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)
C09K3/14, B24B, C09G1/02, H01L21/304

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	1996-2014
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2014	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2014

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2012-515806 A (Cabot Corp.), 12 July 2012 (12.07.2012), claim 1; paragraphs [0001] to [0004], [0008], [0013] to [0014], [0019], [0021] to [0022], [0026] to [0027]; examples (particularly, examples 5, 7 to 9, 14 to 16) & US 2010/0181525 A1 & WO 2010/085324 A1 & TW 201031739 A & CN 102361940 A	1-9
X	JP 2013-102051 A (Fujimi Inc.), 23 May 2013 (23.05.2013), claims 1, 4 to 7; paragraphs [0001] to [0007], [0014] to [0016], [0026] to [0027], [0046], [0052] & WO 2013/069714 A1 & TW 201335346 A	1,3-9

☒ 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	Date of mailing of the international search report
10 October, 2014 (10.10.14)	21 October, 2014 (21.10.14)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office Facsimile No.	Authorized officer Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2014/071209

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2013-089819 A (Fujimi Inc.), 13 May 2013 (13.05.2013), claims 1, 6 to 9; paragraphs [0001] to [0009], [0013], [0017] to [0018], [0039] to [0041], [0045] (Family: none)	1,3-9
X	JP 2003-277731 A (Catalysts & Chemicals Industries Co., Ltd.), 02 October 2003 (02.10.2003), claim 1; paragraphs [0001] to [0006], [0008] to [0009], [0014] to [0015], [0019] to [0020] (Family: none)	1-4,7-9
X	JP 2011-216582 A (Fujifilm Corp.), 27 October 2011 (27.10.2011), claims 1, 2, 4, 7, 8, 10; paragraphs [0001] to [0008], [0029], [0047] to [0048], [0122], [0129] to [0130]; examples (Family: none)	1,3,4,7-9

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２０１４／０７１２０９

Ａ．　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　C09K3/14(2006.01)i, B24B37/00(2012.01)i, C09G1/02(2006.01)i, H01L21/304(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.　C09K3/14, B24B, C09G1/02, H01L21/304

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	１９７１－２０１４年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０１４年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０１４年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

Ｃ．　関連すると認められる文献

引用文献のカテゴリー＊	引用文献名　及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する請求項の番号
X	JP 2012-515806 A（キャボット　コーポレイション）2012.07.12, 請求項１、【０００１】～【０００４】、【０００８】、【００１３】～【００１４】、【００１９】、【００２１】～【００２２】、【００２６】～【００２７】、実施例（特に、例５、例７～９、例１４～１６） & US 2010/0181525 A1 & WO 2010/085324 A1 & TW 201031739 A & CN 102361940 A	１～９

☑　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	国際調査報告の発送日
１０．１０．２０１４	２１．１０．２０１４

国際調査機関の名称及びあて先
日本国特許庁（ＩＳＡ／ＪＰ）
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）　４Ｖ　９６３５
富永　久子
電話番号　０３－３５８１－１１０１　内線　３４８３

Ｃ（続き）．　関連すると認められる文献

引用文献のカテゴリー＊	引用文献名　及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する請求項の番号
X	JP 2013-102051 A（株式会社フジミインコーポレーテッド） 2013.05.23, 請求項１、４～７、【０００１】～【０００７】、 【００１４】～【００１６】、【００２６】～【００２７】、 【００４６】、【００５２】 & WO 2013/069714 A1 & TW 201335346 A	１、３～９
X	JP 2013-089819 A（株式会社フジミインコーポレーテッド） 2013.05.13, 請求項１、６～９、【０００１】～【０００９】、 【００１３】、【００１７】～【００１８】、【００３９】～ 【００４１】、【００４５】 (ファミリーなし)	１、３～９
X	JP 2003-277731 A（触媒化成工業株式会社）2003.10.02, 請求項１、 【０００１】～【０００６】、【０００８】～【０００９】、 【００１４】～【００１５】、【００１９】～【００２０】 (ファミリーなし)	１～４、 ７～９
X	JP 2011-216582 A（富士フイルム株式会社）2011.10.27, 請求項１、２、４、７、８、１０、【０００１】～【０００８】、 【００２９】、【００４７】～【００４８】、【０１２２】、 【０１２９】～【０１３０】、実施例 (ファミリーなし)	１、３、４、 ７～９