(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
2016 年 8 月 25 日(25.08.2016)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2016/132726 A1

(51) 国際特許分類:
C08F 212/06 (2006.01) *G03F 7/039* (2006.01)
C08F 220/22 (2006.01) *G03F 7/20* (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2016/000771

(22) 国際出願日: 2016 年 2 月 15 日(15.02.2016)

(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 2015-031734 2015 年 2 月 20 日(20.02.2015) JP

(71) 出願人: 日本ゼオン株式会社(**ZEON CORPORATION**) [JP/JP]; 〒1008246 東京都千代田区丸の内一丁目６番２号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 星野　学(**HOSHINO, Manabu**); 〒1008246 東京都千代田区丸の内一丁目６番２号　日本ゼオン株式会社内 Tokyo (JP).

(74) 代理人: 杉村　憲司(**SUGIMURA, Kenji**); 〒1000013 東京都千代田区霞が関三丁目２番１号　霞が関コモンゲート西館３６階 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, 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, ST, 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 2016/132726 A1

(54) **Title**: POLYMER AND POSITIVE RESIST COMPOSITION

(54) 発明の名称 : 重合体およびポジ型レジスト組成物

(57) **Abstract**: The purpose of the present invention is to provide a polymer in which poisoning can be sufficiently suppressed and which can be satisfactorily used as a positive resist which has a high sensitivity, and to provide a positive resist composition which can efficiently form a high-resolution resist pattern. The polymer contains an α-methylstyrene unit and an α-chloro-methyl acrylate unit, the molecular weight distribution (Mw/Mn) is less than 1.25, and the proportion of components of a molecular weight of less than 6000 exceeds 0.5%. This positive resist composition contains the aforementioned polymer and a solvent.

(57) 要約:　本発明は、裾引きが十分に抑制され、そして感度の高いポジ型レジストとして良好に使用し得る重合体、および、高解像度のレジストパターンを効率良く形成し得るポジ型レジスト組成物を提供することを目的とする。本発明の重合体は、α－メチルスチレン単位と、α－クロロアクリル酸メチル単位とを含有し、分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）が１．２５未満であり、分子量が６０００未満の成分の割合が０．５％超である。また、本発明のポジ型レジスト組成物は、上述の重合体と、溶剤とを含む。

明　細　書

発明の名称 ： 重合体およびポジ型レジスト組成物

技術分野

[0001] 本発明は、重合体およびポジ型レジスト組成物に関し、特には、ポジ型レジストとして好適に使用し得る重合体および当該重合体を含むポジ型レジスト組成物に関するものである。

背景技術

[0002] 従来、半導体製造等の分野において、電子線などの電離放射線や紫外線などの短波長の光（以下、電離放射線と短波長の光とを合わせて「電離放射線等」と称することがある。）の照射により主鎖が切断されて現像液に対する溶解性が増大する重合体が、主鎖切断型のポジ型レジストとして使用されている。

[0003] そして、例えば特許文献１には、高感度な主鎖切断型のポジ型レジストとして、α－メチルスチレン単位とα－クロロアクリル酸メチル単位とを含有するα－メチルスチレン・α－クロロアクリル酸メチル共重合体よりなるポジ型レジストが開示されている。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：特公平８－３６３６号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005] ここで、レジストパターンの形成に要する電離放射線等の照射量を低減して、レジストパターン形成の効率を高める観点からは、ポジ型レジストには、感度を高めつつ、露光部が現像液に十分に溶解せずに一部残存してしまう現象（裾引き）を抑制することが求められている。

[0006] しかし、特許文献１に記載のα－メチルスチレン・α－クロロアクリル酸メチル共重合体よりなるポジ型レジストは、感度の高さが十分ではなく、そ

して裾引きを十分に抑制することもできなかった。また近年、現像工程の工程条件（処理時間やシャワー現像における現像台の回転速度等）を調整することにより裾引きを解消する手法も検討されているが、現像工程が煩雑となり易い。よって、ポジ型レジストを構成する重合体の性状を改良することにより、ポジ型レジストの高感度化および裾引き抑制を可能とする技術が望まれる。

[0007] そこで、本発明は、裾引きが十分に抑制され、そして感度の高いポジ型レジストとして良好に使用し得る重合体を提供することを目的とする。

また、本発明は、高解像度のレジストパターンを効率良く形成し得るポジ型レジスト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] 本発明者は、上記目的を達成するために鋭意検討を行った。そして、本発明者は、所定の分子量分布を有し、且つ分子量が６０００未満の成分の割合が所定の値を超えるα－メチルスチレン・α－クロロアクリル酸メチル共重合体が、裾引きが十分に抑制され、そして感度の高いポジ型レジストとして良好に使用し得ることを見出し、本発明を完成させた。

[0009] 即ち、この発明は、上記課題を有利に解決することを目的とするものであり、本発明の重合体は、α－メチルスチレン単位と、α－クロロアクリル酸メチル単位とを含有し、分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）が１．２５未満であり、分子量が６０００未満の成分の割合が０．５％超であることを特徴とする。分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）が１．２５未満であって、分子量が６０００未満の成分の割合が０．５％超であるα－メチルスチレン・α－クロロアクリル酸メチル共重合体は、ポジ型レジストとして使用した際の裾引きが十分に抑制され、また感度が高く、ポジ型レジストとして良好に使用することができる。

ここで、本発明において、「分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）」とは、数平均分子量（Ｍｎ）に対する重量平均分子量（Ｍｗ）の比を指す。そして、本発明において、「数平均分子量（Ｍｎ）」および「重量平均分子量（Ｍｗ）」は

、ゲル浸透クロマトグラフィーを用いて測定することができる。また、本発明において、「分子量が６０００未満の成分の割合」は、ゲル浸透クロマトグラフィーによって得られるクロマトグラムを使用し、クロマトグラム中のピークの総面積（Ａ）に対するクロマトグラム中の分子量が６０００未満の成分のピークの面積の合計（Ｂ）の割合（＝（Ｂ／Ａ）×１００％）を算出することにより求めることができる。

[0010] ここで、本発明の重合体は、分子量が６０００未満の成分の割合が３．０％以上であることが好ましい。分子量が６０００未満の成分の割合が３．０％以上であれば、ポジ型レジストとして使用した際の感度を十分に高めつつ、裾引きを更に抑制することができるからである。

[0011] そして、本発明の重合体は、分子量が２００００超の成分の割合が７０％以下であることが好ましい。分子量が２００００超の成分の割合が７０％以下であれば、ポジ型レジストとして使用した際の感度を十分に高めつつ、裾引きを更に抑制することができるからである。

ここで、本発明において、「分子量が２００００超の成分の割合」は、ゲル浸透クロマトグラフィーによって得られるクロマトグラムを使用し、クロマトグラム中のピークの総面積（Ａ）に対するクロマトグラム中の分子量が２００００超の成分のピークの面積の合計（Ｃ）の割合（＝（Ｃ／Ａ）×１００％）を算出することにより求めることができる。

[0012] 更に、本発明の重合体は、重量平均分子量（Ｍｗ）が２５０００以下であることが好ましい。重量平均分子量（Ｍｗ）が２５０００以下であれば、ポジ型レジストとして使用した際の感度を十分に高めつつ、裾引きを更に抑制することができるからである。

[0013] また、この発明は、上記課題を有利に解決することを目的とするものであり、本発明のポジ型レジスト組成物は、上述した重合体の何れかと、溶剤とを含むことを特徴とする。上述した重合体をポジ型レジストとして含有すれば、高解像度のレジストパターンを効率良く形成することができる。

発明の効果

[0014] 本発明の重合体によれば、裾引きが十分に抑制され、そして感度の高いポジ型レジストを提供することができる。

また、本発明のポジ型レジスト組成物によれば、高解像度のレジストパターンを効率良く形成することができる。

発明を実施するための形態

[0015] 以下、本発明の実施形態について詳細に説明する。

ここで、本発明の重合体は、電子線などの電離放射線や紫外線などの短波長の光の照射により主鎖が切断されて低分子量化する、主鎖切断型のポジ型レジストとして良好に使用することができる。そして、本発明のポジ型レジスト組成物は、ポジ型レジストとして本発明の重合体を含むものである。

[0016] （重合体）

本発明の重合体は、α－メチルスチレン単位と、α－クロロアクリル酸メチル単位とを含有するα－メチルスチレン・α－クロロアクリル酸メチル共重合体であり、分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）が１．２５未満であり、分子量が６０００未満の成分の割合が０．５％超であることを特徴とする。そして、本発明の重合体は、α位にクロロ基（－Ｃｌ）を有するα－クロロアクリル酸メチルに由来する構造単位（α－クロロアクリル酸メチル単位）を含んでいるので、電離放射線等（例えば、電子線、ＫｒＦレーザー、ＡｒＦレーザー、ＥＵＶレーザーなど）が照射されると、主鎖が容易に切断されて低分子量化する。また、本発明の重合体は、分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）が１．２５未満であり、且つ分子量が６０００未満の成分の割合が０．５％超であるので、ポジ型レジストとして使用した際の裾引きが十分に抑制され、そして感度が高く、主鎖切断型のポジ型レジストとして良好に使用することができる。

[0017] ＜α－メチルスチレン単位＞

ここで、α－メチルスチレン単位は、α－メチルスチレンに由来する構造単位である。そして、本発明の重合体は、α－メチルスチレン単位を有しているので、ポジ型レジストとして使用した際に、ベンゼン環の保護安定性に

より優れた耐ドライエッチング性を発揮する。

なお、本発明の重合体は、α－メチルスチレン単位を３０ｍｏｌ％以上７０ｍｏｌ％以下の割合で含有することが好ましい。

[0018] ＜α－クロロアクリル酸メチル単位＞

また、α－クロロアクリル酸メチル単位は、α－クロロアクリル酸メチルに由来する構造単位である。そして、本発明の重合体は、α－クロロアクリル酸メチル単位を有しているので、電離放射線等が照射されると、塩素原子が脱離し、β開裂反応によって主鎖が容易に切断される。従って、本発明の重合体よりなるポジ型レジストは、高い感度を示す。

なお、本発明の重合体は、α－クロロアクリル酸メチル単位を３０ｍｏｌ％以上７０ｍｏｌ％以下の割合で含有することが好ましい。

[0019] ＜分子量分布＞

本発明の重合体の分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）は、１．２５未満であることが必要であり、１．２０以下であることが好ましく、１．１８以下であることがより好ましく、１．１７以下であることが更に好ましい。重合体の分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）が１．２５以上の場合、ポジ型レジストとして使用した際の裾引きを抑制することができず、そして感度を十分に高めることができない。なお、重合体の調製の容易性の観点からは、本発明の重合体の分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）は、１．１０以上であることが好ましい。

[0020] ［重量平均分子量］

本発明の重合体の重量平均分子量（Ｍｗ）は、２５０００以下であることが好ましく、１８０００以下であることがより好ましく、１２０００以下であることが更に好ましく、１００００以下であることが特に好ましく、９０００以下であることが最も好ましい。重合体の重量平均分子量（Ｍｗ）が２５０００以下であれば、ポジ型レジストとして使用した際の感度を十分に高めつつ、裾引きを更に抑制することができる。なお、レジストパターンの形成性を確保する観点からは、本発明の重合体の重量平均分子量（Ｍｗ）は、７０００以上であることが好ましい。

[0021] ［数平均分子量］

本発明の重合体の数平均分子量（Ｍｎ）は、２００００以下であることが好ましく、１６０００以下であることがより好ましく、１００００以下であることが更に好ましく、８０００以下であることが特に好ましい。重合体の数平均分子量（Ｍｎ）が２００００以下であれば、ポジ型レジストとして使用した際の感度を十分に高めつつ、裾引きを更に抑制することができる。なお、レジストパターンの形成性を確保する観点からは、本発明の重合体の数平均分子量（Ｍｎ）は、６０００以上であることが好ましい。

[0022] ＜分子量が６０００未満の成分の割合＞

本発明の重合体は、分子量が６０００未満の成分の割合が、０．５％超であることが必要であり、３．０％以上であることが好ましく、８．０％以上であることがより好ましく、９．０％以上であることが更に好ましく、２０％以上であることが特に好ましい。分子量が６０００未満の成分の割合が０．５％以下の場合、ポジ型レジストとして使用した際の裾引きを抑制することができず、そして感度を十分に高めることができない。なお、レジストパターンの形成性を確保する観点からは、分子量が６０００未満の成分の割合は、４５％以下であることが好ましい。

[0023] ＜分子量が２００００超の成分の割合＞

本発明の重合体は、分子量が２００００超の成分の割合が、７０％以下であることが好ましく、４５％以下であることがより好ましく、２０％以下であることが更に好ましく、１３％以下であることが特に好ましく、４％以下であることが最も好ましい。分子量が２００００超の成分の割合が７０％以下であれば、ポジ型レジストとして使用した際の感度を十分に高めつつ、裾引きを更に抑制することができる。

[0024] ＜分子量が４００００超の成分の割合＞

本発明の重合体は、分子量が４００００超の成分の割合が、４．０％以下であることが好ましく、１．０％以下であることがより好ましく、そして本発明の重合体は、分子量が４００００超の成分を含有しないことが更に好ま

しい。分子量が４００００超の成分の割合が４．０％以下であれば、ポジ型レジストとして使用した際の感度を十分に高めつつ、裾引きを更に抑制することができる。

なお、本発明において、「分子量が４００００超の成分の割合」は、ゲル浸透クロマトグラフィーによって得られるクロマトグラムを使用し、クロマトグラム中のピークの総面積（Ａ）に対するクロマトグラム中の分子量が４００００超の成分のピークの面積の合計（Ｄ）の割合（＝（Ｄ／Ａ）×１００％）を算出することにより求めることができる。

[0025] ＜分子量が６００００超の成分の割合＞

本発明の重合体は、分子量が６００００超の成分の割合が、１．０％以下であることが好ましく、そして本発明の重合体は、分子量が６００００超の成分を含有しないことがより好ましい。分子量が６００００超の成分の割合が１．０％以下であれば、ポジ型レジストとして使用した際の感度を十分に高めつつ、裾引きを更に抑制することができる。

ここで、本発明において、「分子量が６００００超の成分の割合」は、ゲル浸透クロマトグラフィーによって得られるクロマトグラムを使用し、クロマトグラム中のピークの総面積（Ａ）に対するクロマトグラム中の分子量が６００００超の成分のピークの面積の合計（Ｅ）の割合（＝（Ｅ／Ａ）×１００％）を算出することにより求めることができる。

[0026] （重合体の調製方法）

そして、上述した性状を有する重合体は、例えば、α－メチルスチレンとα－クロロアクリル酸メチルとを含む単量体組成物を重合させた後、得られた重合物を精製することにより調製することができる。

なお、重合体の組成、分子量分布、重量平均分子量および数平均分子量、並びに、重合体中の各分子量の成分の割合は、重合条件および精製条件を変更することにより調整することができる。具体的には、例えば、重量平均分子量および数平均分子量は、重合温度を高くすれば、小さくすることができる。また、重量平均分子量および数平均分子量は、重合時間を短くすれば、

小さくすることができる。

[0027] ＜単量体組成物の重合＞

ここで、本発明の重合体の調製に用いる単量体組成物としては、α－メチルスチレンおよびα－クロロアクリル酸メチルを含む単量体と、溶媒と、重合開始剤と、任意に添加される添加剤との混合物を用いることができる。そして、単量体組成物の重合は、既知の方法を用いて行うことができる。中でも、溶媒としては、シクロペンタノンなどを用いることが好ましく、重合開始剤としては、アゾビスイソブチロニトリルなどのラジカル重合開始剤を用いることが好ましい。

[0028] なお、重合体の組成は、重合に使用した単量体組成物中の各単量体の含有割合を変更することにより調整することができる。また、重合体中に含まれている分子量が高い成分の割合は、重合開始剤の量を変更することにより調整することができ、例えば重合開始剤の量を少なくすれば、分子量が高い成分の割合を増加させることができる。

[0029] そして、単量体組成物を重合して得られた重合物は、特に限定されることなく、重合物を含む溶液にテトラヒドロフラン等の良溶媒を添加した後、良溶媒を添加した溶液をメタノール等の貧溶媒中に滴下して重合物を凝固させることにより回収し、以下のようにして精製することができる。

[0030] ＜重合物の精製＞

得られた重合物を精製して上述した性状を有する重合体を得る際に用いる精製方法としては、特に限定されることなく、再沈殿法やカラムクロマトグラフィー法などの既知の精製方法を用いることができる。中でも、精製方法としては、再沈殿法を用いることが好ましい。

なお、重合物の精製は、複数回繰り返して実施してもよい。

[0031] そして、再沈殿法による重合物の精製は、例えば、得られた重合物をテトラヒドロフラン等の良溶媒に溶解した後、得られた溶液を、テトラヒドロフラン等の良溶媒とメタノール等の貧溶媒との混合溶媒に滴下し、重合物の一部を析出させることにより行うことが好ましい。このように、良溶媒と貧溶

媒との混合溶媒中に重合物の溶液を滴下して重合物の精製を行えば、良溶媒および貧溶媒の種類や混合比率を変更することにより、得られる重合体の分子量分布、重量平均分子量、数平均分子量および分子量が低い成分の割合を容易に調整することができる。具体的には、例えば、混合溶媒中の良溶媒の割合を高めるほど、混合溶媒中で析出する重合体の分子量を大きくすることができる。

[0032] なお、再沈殿法により重合物を精製する場合、本発明の重合体としては、所望の性状を満たせば、良溶媒と貧溶媒との混合溶媒中で析出した重合体を用いてもよいし、混合溶媒中で析出しなかった重合体（即ち、混合溶媒中に溶解している重合体）を用いてもよい。ここで、混合溶媒中で析出しなかった重合体は、濃縮乾固などの既知の手法を用いて混合溶媒中から回収することができる。

[0033] （ポジ型レジスト組成物）

本発明のポジ型レジスト組成物は、上述した重合体と、溶剤とを含み、任意に、レジスト組成物に配合され得る既知の添加剤を更に含有する。そして、本発明のポジ型レジスト組成物は、上述した重合体をポジ型レジストとして含有しているので、本発明のポジ型レジスト組成物を塗布および乾燥させて得られるレジスト膜を使用すれば、高解像度のレジストパターンを効率良く形成することができる。

[0034] ＜溶剤＞

なお、溶剤としては、上述した重合体を溶解可能な溶剤であれば既知の溶剤を用いることができる。中でも、適度な粘度のポジ型レジスト組成物を得てポジ型レジスト組成物の塗工性を向上させる観点からは、溶剤としてはアニソールを用いることが好ましい。

実施例

[0035] 以下、本発明について実施例に基づき具体的に説明するが、本発明はこれら実施例に限定されるものではない。なお、以下の説明において、量を表す「%」および「部」は、特に断らない限り、質量基準である。

そして、実施例および比較例において、重合体の重量平均分子量、数平均分子量および分子量分布、重合体中の各分子量の成分の割合、並びに、重合体よりなるポジ型レジストの感度および裾引きは、下記の方法で測定および評価した。

[0036] ＜重量平均分子量、数平均分子量および分子量分布＞

得られた重合体についてゲル浸透クロマトグラフィーを用いて重量平均分子量（Ｍｗ）および数平均分子量（Ｍｎ）を測定し、分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）を算出した。

具体的には、ゲル浸透クロマトグラフ（東ソー製、ＨＬＣ－８２２０）を使用し、展開溶媒としてテトラヒドロフランを用いて、重合体の重量平均分子量（Ｍｗ）および数平均分子量（Ｍｎ）を標準ポリスチレン換算値として求めた。そして、分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）を算出した。

＜重合体中の各分子量の成分の割合＞

ゲル浸透クロマトグラフ（東ソー製、ＨＬＣ－８２２０）を使用し、展開溶媒としてテトラヒドロフランを用いて、重合体のクロマトグラフを得た。そして、得られたクロマトグラムから、ピークの総面積（Ａ）、分子量が６０００未満の成分のピークの面積の合計（Ｂ）、分子量が２００００超の成分のピークの面積の合計（Ｃ）、分子量が４００００超の成分のピークの面積の合計（Ｄ）、および分子量が６００００超の成分のピークの面積の合計（Ｅ）を求めた。そして、下記式を用いて各分子量の成分の割合を算出した。

分子量が６０００未満の成分の割合（％）＝（Ｂ／Ａ）×１００

分子量が２００００超の成分の割合（％）＝（Ｃ／Ａ）×１００

分子量が４００００超の成分の割合（％）＝（Ｄ／Ａ）×１００

分子量が６００００超の成分の割合（％）＝（Ｅ／Ａ）×１００

＜感度＞

スピンコーター(ミカサ製、ＭＳ－Ａ１５０)を使用し、ポジ型レジスト組成物を直径４インチのシリコンウェハ上に厚さ５００ｎｍになるように塗布

した。そして、塗布したポジ型レジスト組成物を温度１８０℃のホットプレートで３分間加熱して、シリコンウェハ上にレジスト膜を形成した。そして、電子線描画装置（エリオニクス社製、ＥＬＳ－５７００）を用いて、電子線の照射量が互いに異なるパターン（寸法５００μｍ×５００μｍ）をレジスト膜上に複数描画し、レジスト用現像液として酢酸アミル（日本ゼオン社製、ＺＥＤ－Ｎ５０）を用いて温度２３℃で１分間の現像処理を行った後、イソプロピルアルコールで１０秒間リンスした。なお、電子線の照射量は、４μＣから１５２μＣの範囲内で４μＣずつ異ならせた。次に、描画した部分のレジスト膜の厚みを光学式膜厚計（大日本スクリーン製、ラムダエース）で測定し、電子線の総照射量の常用対数と、現像後のレジスト膜の残膜率（＝現像後のレジスト膜の膜厚／シリコンウェハ上に形成したレジスト膜の膜厚）との関係を示す感度曲線を作成した。そして、得られた感度曲線（横軸：電子線の総照射量の常用対数、縦軸：レジスト膜の残膜率（０≦残膜率≦１．００））の残膜率０．２０～０．８０の範囲において感度曲線を二次関数にフィッティングし、得られた二次関数（残膜率と総照射量の常用対数との関数）上の残膜率０の点と残膜率０．５０の点とを結ぶ直線（感度曲線の傾きの近似線）を作成した。次いで、得られた直線の残膜率が０となる際の、電子線の総照射量Ｅｔｈ（μＣ／ｃｍ^2）を求めた。そして以下の基準に従って評価した。Ｅｔｈの値が小さいほど、レジストの感度が高いことを示す。

Ａ：Ｅｔｈが５５μＣ／ｃｍ^{2}未満

Ｂ：Ｅｔｈが５５μＣ／ｃｍ^{2}以上６０μＣ／ｃｍ^{2}未満

Ｃ：Ｅｔｈが６０μＣ／ｃｍ^{2}以上

＜裾引き＞

「感度」の評価と同様にして、シリコンウェハ上にレジスト膜を形成し、感度曲線を作成した。そして、得られた感度曲線（横軸：電子線の総照射量の常用対数、縦軸：レジスト膜の残膜率（０≦残膜率≦１．００））から、残膜率が０．１から０．０１になるまでに要する電子線の照射量E_1（μＣ／ｃｍ^2）、残膜率が０．０７から０．０１になるまでに要する電子線の照射量

E_2（μＣ／ｃｍ^2）、および残膜率が０．０５から０．０１になるまでに要する電子線の照射量E_3（μＣ／ｃｍ^2）を求め、それぞれ以下の基準に従って評価した。E_1、E_2およびE_3の値が小さいほど、露光したレジスト膜の溶解性が高く、裾引きが抑制されていることを示す。

［裾引き（１）－電子線の照射量E_1－］

Ａ：E_1が３μＣ／ｃｍ^{2}以下

Ｂ：E_1が３μＣ／ｃｍ^{2}超５μＣ／ｃｍ^{2}以下

Ｃ：E_1が５μＣ／ｃｍ^{2}超１０μＣ／ｃｍ^{2}以下

Ｄ：E_1が１０μＣ／ｃｍ^{2}超１５μＣ／ｃｍ^{2}以下

Ｅ：E_1が１５μＣ／ｃｍ^{2}超

［裾引き（２）－電子線の照射量E_2－］

Ａ：E_2が２μＣ／ｃｍ^{2}以下

Ｂ：E_2が２μＣ／ｃｍ^{2}超５μＣ／ｃｍ^{2}以下

Ｃ：E_2が５μＣ／ｃｍ^{2}超１０μＣ／ｃｍ^{2}以下

Ｄ：E_2が１０μＣ／ｃｍ^{2}超１５μＣ／ｃｍ^{2}以下

Ｅ：E_2が１５μＣ／ｃｍ^{2}超

［裾引き（３）－電子線の照射量E_3－］

Ａ：E_3が３μＣ／ｃｍ^{2}以下

Ｂ：E_3が３μＣ／ｃｍ^{2}超５μＣ／ｃｍ^{2}以下

Ｃ：E_3が５μＣ／ｃｍ^{2}超１０μＣ／ｃｍ^{2}以下

Ｄ：E_3が１０μＣ／ｃｍ^{2}超

[0037]（実施例１）

＜重合体の調製＞

［単量体組成物の重合］

単量体としてのα－クロロアクリル酸メチル３．０ｇおよびα－メチルスチレン６．８８ｇと、溶媒としてのシクロペンタノン２．４７ｇと、重合開始剤としてのアゾビスイソブチロニトリル０．０８７２８ｇとを含む単量体組成物をガラス容器に入れ、ガラス容器を密閉および窒素置換して、窒素雰

囲気下、７８℃の恒温槽内で６．５時間撹拌した。その後、室温に戻し、ガラス容器内を大気解放した後、得られた溶液にテトラヒドロフラン（ＴＨＦ）３０ｇを加えた。そして、ＴＨＦを加えた溶液をメタノール３００ｇ中に滴下し、重合物を析出させた。その後、析出した重合物を含む溶液をキリヤマ漏斗によりろ過し、白色の凝固物（重合物）を得た。得られた重合物の重量平均分子量（Ｍｗ）は１７０００であり、分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）は１．４６であった。また、得られた重合物は、α－メチルスチレン単位とα－クロロアクリル酸メチル単位とを５０ｍｏｌ％ずつ含んでいた。

［重合物の精製］

次いで、得られた重合物を１００ｇのＴＨＦに溶解させ、得られた溶液をＴＨＦ５００ｇとメタノール（ＭｅＯＨ）５００ｇとの混合溶媒に滴下し、白色の凝固物（α－メチルスチレン単位およびα－クロロアクリル酸メチル単位を含有する重合体）を析出させた。その後、析出した重合体を含む溶液をキリヤマ漏斗によりろ過し、白色の重合体を得た。そして、得られた重合体について、重量平均分子量、数平均分子量および分子量分布、重合体中の各分子量の成分の割合を測定した。結果を表１に示す。

＜ポジ型レジスト組成物の調製＞

得られた重合体を溶剤としてのアニソールに溶解させ、重合体の濃度が１１質量％であるレジスト溶液（ポジ型レジスト組成物）を調製した。そして、レジストの感度および裾引きを評価した。結果を表１に示す。

[0038] （実施例２）

単量体組成物の重合時に使用する重合開始剤としてのアゾビスイソブチロニトリルの量を０．１０９１０ｇに変更した以外は実施例１と同様にして、重合物、重合体およびポジ型レジスト組成物を調製した。そして、実施例１と同様にして測定および評価を行った。結果を表１に示す。

なお、精製前の重合物の重量平均分子量（Ｍｗ）は１５０００であり、分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）は１．４２であった。

[0039] （実施例３）

単量体組成物の重合時に使用する重合開始剤としてのアゾビスイソブチロニトリルの量を０．２１８２１ｇに変更した以外は実施例１と同様にして、重合物、重合体およびポジ型レジスト組成物を調製した。そして、実施例１と同様にして測定および評価を行った。結果を表１に示す。

なお、精製前の重合物の重量平均分子量（Ｍｗ）は１００００であり、分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）は１．４７であった。

[0040]（実施例４）

単量体組成物の重合時に使用する重合開始剤としてのアゾビスイソブチロニトリルの量を０．３２７３１ｇに変更し、重合物の精製時に混合溶媒としてＴＨＦ４５０ｇとＭｅＯＨ５５０ｇとの混合溶媒を用いた以外は実施例１と同様にして、重合物、重合体およびポジ型レジスト組成物を調製した。そして、実施例１と同様にして測定および評価を行った。結果を表１に示す。

なお、精製前の重合物の重量平均分子量（Ｍｗ）は８２００であり、分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）は１．４８であった。

[0041]（実施例５）

単量体組成物の重合時に使用する重合開始剤としてのアゾビスイソブチロニトリルの量を０．４３６４１ｇに変更し、重合物の精製時に混合溶媒としてＴＨＦ４５０ｇとＭｅＯＨ５５０ｇとの混合溶媒を用いた以外は実施例１と同様にして、重合物、重合体およびポジ型レジスト組成物を調製した。そして、実施例１と同様にして測定および評価を行った。結果を表１に示す。

なお、精製前の重合物の重量平均分子量（Ｍｗ）は６７００であり、分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）は１．４８であった。

[0042]（実施例６）

単量体組成物の重合時に使用する重合開始剤としてのアゾビスイソブチロニトリルの量を０．５４５５２ｇに変更し、重合物の精製時に混合溶媒としてＴＨＦ４００ｇとＭｅＯＨ６００ｇとの混合溶媒を用いた以外は実施例１と同様にして、重合物、重合体およびポジ型レジスト組成物を調製した。そして、実施例１と同様にして測定および評価を行った。結果を表１に示す。

なお、精製前の重合物の重量平均分子量（Ｍｗ）は５９００であり、分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）は１．４７であった。

[0043]（実施例７）

単量体組成物の重合時に使用する重合開始剤としてのアゾビスイソブチロニトリルの量を０．８１８２７ｇに変更し、重合物の精製時に混合溶媒としてＴＨＦ３５０ｇとＭｅＯＨ６５０ｇとの混合溶媒を用いた以外は実施例１と同様にして、重合物、重合体およびポジ型レジスト組成物を調製した。そして、実施例１と同様にして測定および評価を行った。結果を表１に示す。

なお、精製前の重合物の重量平均分子量（Ｍｗ）は５０００であり、分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）は１．４３であった。

[0044]（実施例８）

単量体組成物の重合時に使用する重合開始剤としてのアゾビスイソブチロニトリルの量を１．０９１０３ｇに変更し、重合物の精製時に混合溶媒としてＴＨＦ３００ｇとＭｅＯＨ７００ｇとの混合溶媒を用いた以外は実施例１と同様にして、重合物、重合体およびポジ型レジスト組成物を調製した。そして、実施例１と同様にして測定および評価を行った。結果を表１に示す。

なお、精製前の重合物の重量平均分子量（Ｍｗ）は４０００であり、分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）は１．３８であった。

[0045]（比較例１）

単量体組成物の重合時に使用する重合開始剤としてのアゾビスイソブチロニトリルの量を０．０１０９１ｇに変更し、重合物の精製を実施することなく、単量体組成物を重合した際にろ過により回収した重合物をそのまま重合体として用いてポジ型レジスト組成物を調製した以外は実施例１と同様にして、重合物（α－メチルスチレン単位およびα－クロロアクリル酸メチル単位を含有する重合体）およびポジ型レジスト組成物を調製した。そして、実施例１と同様にして測定および評価を行った。結果を表２に示す。

[0046]（比較例２）

単量体組成物の重合時に使用する重合開始剤としてのアゾビスイソブチロ

ニトリルの量を０．０１０９１ｇに変更し、重合物の精製時に混合溶媒としてＴＨＦ６００ｇとＭｅＯＨ４００ｇとの混合溶媒を用いた以外は実施例１と同様にして、重合物、重合体およびポジ型レジスト組成物を調製した。そして、実施例１と同様にして測定および評価を行った。結果を表２に示す。

なお、精製前の重合物の重量平均分子量（Ｍｗ）は５５０００であり、分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）は１．８５であった。

[0047]（比較例３）

＜重合体の調製＞

［単量体組成物の重合］

重合開始剤としてのアゾビスイソブチロニトリルの量を０．０１０９１ｇに変更した以外は実施例１と同様にして単量体組成物を重合し、重合物を得た。なお、重合物の重量平均分子量（Ｍｗ）は５５０００であり、分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）は１．８５であった。

［重合物の精製］

得られた重合物を１００ｇのＴＨＦに溶解させ、得られた溶液をＴＨＦ６００ｇとＭｅＯＨ４００ｇとの混合溶媒に滴下し、白色の凝固物を析出させた。その後、凝固物を含む溶液をキリヤマ漏斗によりろ過し、ろ液を回収した。そして、ろ液を濃縮乾固し、白色の凝固物（α－メチルスチレン単位およびα－クロロアクリル酸メチル単位を含有する重合体）を得た。得られた重合体について、重量平均分子量、数平均分子量および分子量分布、重合体中の各分子量の成分の割合を実施例１と同様にして測定した結果を表２に示す。

＜ポジ型レジスト組成物の調製＞

上述のようにして調製した重合体を用いた以外は実施例１と同様にして、ポジ型レジスト組成物を調製した。そして、実施例１と同様にして評価を行った。結果を表２に示す。

[0048]（比較例４）

＜重合体の調製＞

［単量体組成物の重合］

重合開始剤としてのアゾビスイソブチロニトリルの量を０．０１０９１ｇに変更した以外は実施例１と同様にして単量体組成物を重合し、重合物を得た。なお、重合物の重量平均分子量（Ｍｗ）は５５０００であり、分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）は１．８５であった。

［重合物の精製］

得られた重合物を１００ｇのＴＨＦに溶解させ、得られた溶液をＴＨＦ６００ｇとＭｅＯＨ４００ｇとの混合溶媒に滴下し、白色の凝固物を析出させた。その後、凝固物を含む溶液をキリヤマ漏斗によりろ過し、析出した白色の凝固物を得た。得られた凝固物の重量平均分子量（Ｍｗ）は６５０００であり、分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）は１．４７であった。

次いで、得られた凝固物を１００ｇのＴＨＦに再び溶解させ、得られた溶液をＴＨＦ６５０ｇとＭｅＯＨ３５０ｇとの混合溶媒に再び滴下し、白色の凝固物を再び析出させた。その後、再析出した凝固物を含む溶液をキリヤマ漏斗によりろ過し、ろ液を回収した。そして、ろ液を濃縮乾固し、白色の凝固物（α－メチルスチレン単位およびα－クロロアクリル酸メチル単位を含有する重合体）を得た。得られた重合体について、重量平均分子量、数平均分子量および分子量分布、重合体中の各分子量の成分の割合を実施例１と同様にして測定した結果を表２に示す。

＜ポジ型レジスト組成物の調製＞

上述のようにして調製した重合体を用いた以外は実施例１と同様にして、ポジ型レジスト組成物を調製した。そして、実施例１と同様にして評価を行った。結果を表２に示す。

[0049] （比較例５）

単量体組成物の重合時に使用する重合開始剤としてのアゾビスイソブチロニトリルの量を０．０２１８２ｇに変更し、重合物の精製時に混合溶媒としてＴＨＦ６００ｇとＭｅＯＨ４００ｇとの混合溶媒を用いた以外は実施例１と同様にして、重合物、重合体およびポジ型レジスト組成物を調製した。そ

して、実施例１と同様にして測定および評価を行った。結果を表２に示す。

なお、精製前の重合物の重量平均分子量（Ｍｗ）は３５０００であり、分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）は１．６０であった。

[0050]（比較例６）

単量体組成物の重合時に使用する重合開始剤としてのアゾビスイソブチロニトリルの量を０．０２１８２ｇに変更し、重合物の精製時に混合溶媒としてＴＨＦ５５０ｇとＭｅＯＨ４５０ｇとの混合溶媒を用いた以外は実施例１と同様にして、重合物、重合体およびポジ型レジスト組成物を調製した。そして、実施例１と同様にして測定および評価を行った。結果を表２に示す。

なお、精製前の重合物の重量平均分子量（Ｍｗ）は３５０００であり、分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）は１．６０であった。

[0051]（比較例７）

単量体組成物の重合時に使用する重合開始剤としてのアゾビスイソブチロニトリルの量を０．０３２７３ｇに変更し、重合物の精製時に混合溶媒としてＴＨＦ５５０ｇとＭｅＯＨ４５０ｇとの混合溶媒を用いた以外は実施例１と同様にして、重合物、重合体およびポジ型レジスト組成物を調製した。そして、実施例１と同様にして測定および評価を行った。結果を表２に示す。

なお、精製前の重合物の重量平均分子量（Ｍｗ）は２９０００であり、分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）は１．５６であった。

[0052]（比較例８）

単量体組成物の重合時に使用する重合開始剤としてのアゾビスイソブチロニトリルの量を０．０４３６４ｇに変更し、重合物の精製時に混合溶媒としてＴＨＦ５５０ｇとＭｅＯＨ４５０ｇとの混合溶媒を用いた以外は実施例１と同様にして、重合物、重合体およびポジ型レジスト組成物を調製した。そして、実施例１と同様にして測定および評価を行った。結果を表２に示す。

なお、精製前の重合物の重量平均分子量（Ｍｗ）は２４０００であり、分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）は１．５３であった。

[0053]（比較例９）

単量体組成物の重合時に使用する重合開始剤としてのアゾビスイソブチロニトリルの量を０．０６５４６ｇに変更し、重合物の精製時に混合溶媒としてＴＨＦ５５０ｇとＭｅＯＨ４５０ｇとの混合溶媒を用いた以外は実施例１と同様にして、重合物、重合体およびポジ型レジスト組成物を調製した。そして、実施例１と同様にして測定および評価を行った。結果を表２に示す。

なお、精製前の重合物の重量平均分子量（Ｍｗ）は２００００であり、分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）は１．４８であった。

[0054]

[表1]

		実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5	実施例6	実施例7	実施例8
重合体	分子量分布(Mw／Mn) [-]	1.20	1.19	1.16	1.18	1.17	1.18	1.17	1.14
	数平均分子量(Mn) [-]	1.8×10^4	1.7×10^4	1.5×10^4	1.1×10^4	1.0×10^4	0.8×10^4	0.8×10^4	0.7×10^4
	重量平均分子量(Mw) [-]	2.2×10^4	2.0×10^4	1.7×10^4	1.3×10^4	1.2×10^4	1.0×10^4	0.9×10^4	0.8×10^4
	分子量6000未満の成分の割合 [%]	0.71	0.75	3.04	8.15	9.72	20.52	30.00	40.00
	分子量20000超の成分の割合 [%]	65.10	61.12	41.73	15.52	11.42	3.91	1.50	0.80
	分子量40000超の成分の割合 [%]	3.56	1.66	0.27	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
	分子量60000超の成分の割合 [%]	0.40	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
評価	感度	A	A	A	A	A	A	A	A
	裾引き(1)	C	C	C	B	B	A	A	A
	裾引き(2)	C	C	B	B	B	A	A	A
	裾引き(3)	B	B	B	B	A	A	A	A

[0055] [表2]

		比較例1	比較例2	比較例3	比較例4	比較例5	比較例6	比較例7	比較例8	比較例9
重合体	分子量分布(Mw／Mn) [-]	1.85	1.47	1.63	1.30	1.27	1.31	1.27	1.24	1.20
	数平均分子量(Mn) [-]	2.9×10^4	4.4×10^4	1.1×10^4	4.9×10^4	4.1×10^4	3.1×10^4	2.8×10^4	2.6×10^4	2.4×10^4
	重量平均分子量(Mw) [-]	5.5×10^4	6.5×10^4	1.7×10^4	6.4×10^4	5.2×10^4	4.1×10^4	3.6×10^4	3.3×10^4	2.8×10^4
	分子量6000未満の成分の割合 [%]	1.60	0.00	13.41	0.10	0.21	0.00	0.05	0.37	0.08
	分子量20000超の成分の割合 [%]	89.41	98.93	39.47	98.63	97.48	95.61	92.98	90.05	87.12
	分子量40000超の成分の割合 [%]	52.02	75.44	4.27	64.26	56.39	35.10	25.61	19.41	10.18
	分子量60000超の成分の割合 [%]	34.11	51.78	2.08	36.13	26.63	14.76	8.71	5.61	1.76
評価	感度	C	C	C	C	C	C	C	C	C
	裾引き(1)	E	E	D	E	E	E	E	E	E
	裾引き(2)	E	E	D	E	E	E	E	E	E
	裾引き(3)	D	D	D	C	D	D	D	D	D

[0056] 表１および表２より、分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）が１．２５未満であり、分子量が６０００未満の成分の割合が０．５％超である重合体を用いた実施例１～８では、裾引きが十分に抑制され、そして感度の高いポジ型レジストを提供可能であることがわかる。

産業上の利用可能性

[0057] 本発明の重合体によれば、裾引きが十分に抑制され、そして感度の高いポジ型レジストを提供することができる。

また、本発明のポジ型レジスト組成物によれば、高解像度のレジストパターンを効率良く形成することができる。

請求の範囲

[請求項1] α－メチルスチレン単位と、α－クロロアクリル酸メチル単位とを含有し、

分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）が１．２５未満であり、

分子量が６０００未満の成分の割合が０．５％超である、重合体。

[請求項2] 分子量が６０００未満の成分の割合が３．０％以上である、請求項１に記載の重合体。

[請求項3] 分子量が２００００超の成分の割合が７０％以下である、請求項１または２に記載の重合体。

[請求項4] 重量平均分子量（Ｍｗ）が２５０００以下である、請求項１～３の何れかに記載の重合体。

[請求項5] 請求項１～４の何れかに記載の重合体と、溶剤とを含む、ポジ型レジスト組成物。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2016/000771

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
C08F212/06(2006.01)i, *C08F220/22*(2006.01)i, *G03F7/039*(2006.01)i, *G03F7/20*(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)
C08F212/06, C08F220/22, G03F7/039, G03F7/20

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	1996-2016
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2016	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2016

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	T. Yamaguchi et al., Molecular weight effect on line-edge roughness, Proceedings of SPIE, 2003, 5039, p.1212-1219	1-5
Y	Katsuya OKUBO et al., "Cho Bisai Kako-yo Denshisen Polymer Resist no Kaihatsu to Hyoka", Polymer Material Forum Koen Yokoshu, 2012, 21, page 38	1-5
P,X	JP 2016-012104 A (Dainippon Printing Co., Ltd.), 21 January 2016 (21.01.2016), claims; examples (Family: none)	1-5

☐ 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
03 March 2016 (03.03.16)	26 April 2016 (26.04.16)

Name and mailing address of the ISA/	Authorized officer
Japan Patent Office 3-4-3,Kasumigaseki,Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915,Japan	Telephone No.

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２０１６／０００７７１

Ａ．　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　C08F212/06(2006.01)i, C08F220/22(2006.01)i, G03F7/039(2006.01)i, G03F7/20(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.　C08F212/06, C08F220/22, G03F7/039, G03F7/20

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	１９７１－２０１６年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０１６年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０１６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）

CAplus/REGISTRY (STN)

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
Y	T. Yamaguchi et al., Molecular weight effect on line-edge roughness, Proceedings of SPIE, 2003, 5039, p.1212-1219	１－５
Y	大久保 勝也 et al., 超微細加工用電子線ポリマーレジストの開発と評価, ポリマー材料フォーラム講演予稿集, 2012, 21, p.38	１－５

☑　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
０３．０３．２０１６	２６．０４．２０１６

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）　４Ｊ　３４４５
安田　周史
電話番号　０３－３５８１－１１０１　内線　３４５７

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
Ｐ，Ｘ	JP 2016-012104 A（大日本印刷株式会社）2016.01.21, 特許請求の範囲、実施例 (ファミリーなし)	１－５