

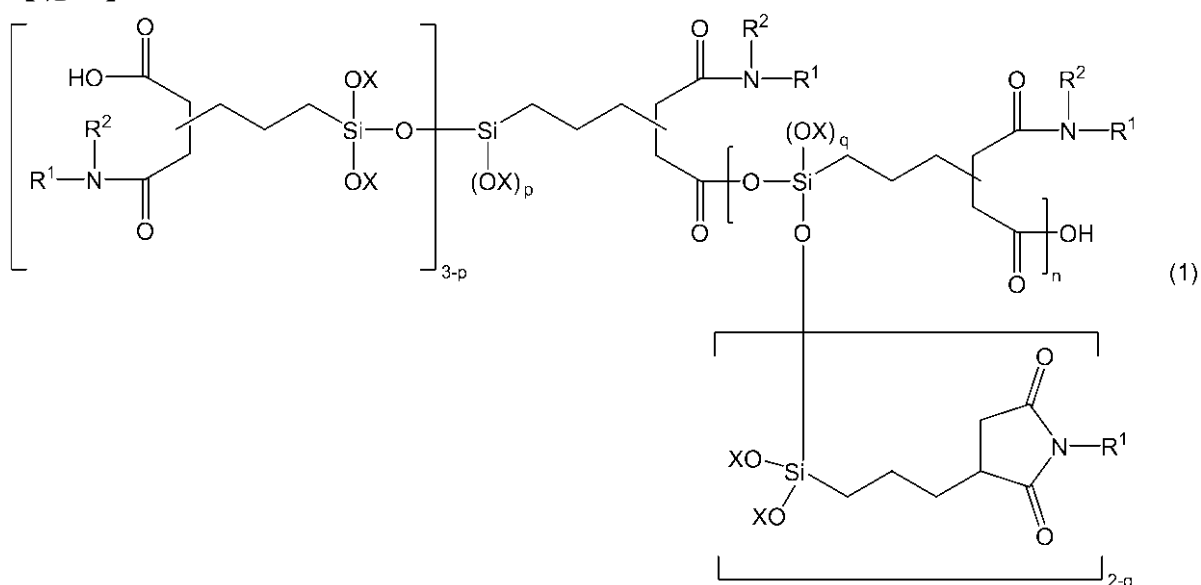
【選択図】 図 1

## 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

下記一般式（１）で表される有機ケイ素化合物の混合物からなるシランカップリング剤。

## 【化 1】



10

20

（式中、 $R^1$ は独立に炭素数 1～10 のアルキル基、又は炭素数 6～10 のアリール基であり、 $R^2$ は独立に水素原子、炭素数 1～10 のアルキル基、又は炭素数 6～10 のアリール基であり、Xは独立に炭素数 1～10 のアルキル基、又は炭素数 6～10 のアリール基であり、nは 1 以上の整数、pは 0～3 の整数、qは 0～2 の整数である。）

## 【請求項 2】

上記  $R^2$  が水素原子である請求項 1 記載のシランカップリング剤。

## 【請求項 3】

上記  $R^1$  が *tert*-ブチル基又はフェニル基である請求項 2 記載のシランカップリング剤。

## 【請求項 4】

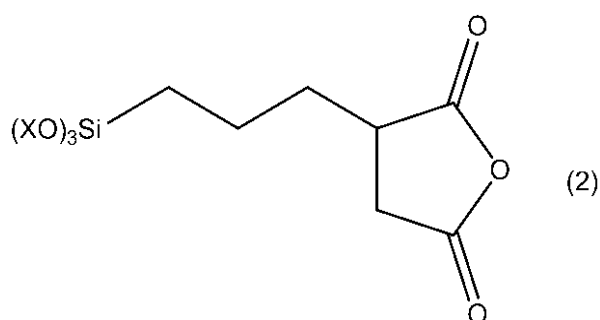
ゲルパーミエーションクロマトグラフィーにおいて、ポリスチレン換算の重量平均分子量が 850 以上であり、且つ重量平均分子量 600 以上の有機ケイ素化合物を 50 質量%以上含むことを特徴とする請求項 1～3 のいずれか 1 項に記載のシランカップリング剤。

30

## 【請求項 5】

下記一般式（２）

## 【化 2】

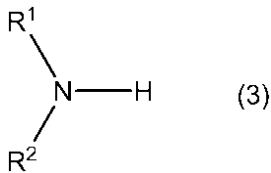


40

（式中、Xは上記と同じである。）

で示される無水コハク酸官能基を有するシランカップリング剤と、下記一般式（３）

## 【化 3】



(式中、 $R^1$ 、 $R^2$ は上記と同じである。)

で示される第一級及び／又は第二級アミン化合物とを、沸点 140℃以上の非プロトン性有機溶媒中で反応させた後、有機溶媒の沸点以上に加熱し、有機溶媒を留去しながらシランカップリング剤構造中のカルボン酸基とアルコキシシリル基の脱アルコール反応を進行

10

## 【請求項 6】

上記沸点 140℃以上の非プロトン性有機溶媒が、プロピレングリコールモノメチルエーテルアセテート、シクロヘキサノン、及び N-メチルピロリドンから選択されることを特徴とする請求項 5 記載シランカップリング剤の製造方法。

## 【請求項 7】

請求項 1～4 のいずれか 1 項に記載のシランカップリング剤を含むプライマー組成物。

## 【請求項 8】

請求項 1～4 のいずれか 1 項に記載のシランカップリング剤を含む塗料組成物。

20

## 【請求項 9】

感光性耐熱性材料用である請求項 8 記載の塗料組成物。

## 【請求項 10】

請求項 8 又は 9 記載の塗料組成物の硬化膜を形成してなる物品。

## 【発明の詳細な説明】

## 【技術分野】

## 【0001】

本発明は、シランカップリング剤及びその製造方法に関し、特にポリイミドに代表される高極性耐熱性樹脂材料と金属との接合に好適なプライマー剤、密着付与剤として用いられるシランカップリング剤及びその製造方法、該シランカップリング剤を含有するプライ

30

## 【背景技術】

## 【0002】

加水分解性シリル基と有機反応性基を有する有機ケイ素化合物は、一般にシランカップリング剤と称され、しばしば無機材料－有機材料間の結合材料として接着剤、塗料添加剤、樹脂改質材として使用される。

## 【0003】

有機反応性基としては、ビニル基、アミノ基、エポキシ基、(メタ)アクリル基、メルカプト基、イソシアネート基、ケチミン構造基、スチリル基が代表的であり、これらを有するシランカップリング剤は公知のものとして種々応用例が知られている。

40

## 【0004】

各種用途において物理特性要求が高次元化するに伴い、使用される有機材料(樹脂)も汎用材料からスーパーエンブラのような特殊材料に変化しており、それらに対して十分な密着改良をなすシランカップリング剤は必ずしも上記官能基を有するものに限らず、各樹脂材料に適合した官能基を有するシランカップリング剤が求められている。

## 【0005】

その中でもポリイミド、ポリアミドのような高極性、耐熱性に優れた有機材料に好適なシランカップリング剤として、モノマー構成単位の酸無水物やアミック酸構造を有するシランカップリング剤、類似構造のイミド環含有シランカップリング剤は、レジスト材料の密着向上剤として種々応用が報告されている。

50

## 【0006】

イミド構造基を有するシランカップリング剤を含むレジスト材料に関する技術（特開2009-15285号公報、特開2010-152302号公報、特許第5034901号公報、国際公開第2009/96050号：特許文献1～4）が開示、権利化されているが、何れもイミド構造を有することによる相溶性、相互作用に由来した密着向上効果によるものであり、イミド構造自体には化学結合性がなく、求める密着性には改良の余地があるといえる。

## 【0007】

アミック酸構造基を有するシランカップリング剤並びに該シランを含むレジスト材料に関する技術（特許第4817710号公報、特開2011-256394号公報、国際公開第2011/114995号：特許文献5～7）も開示、権利化されているが、何れも酸無水物環を有するシランカップリング剤と一級アミン化合物を反応させたシランカップリング剤モノマーの応用に留まるのみであり、該アミック酸を加熱、高分子化させた成分に関する言及はなく、開示技術での密着向上効果は十分でなかった。

## 【先行技術文献】

## 【特許文献】

## 【0008】

【特許文献1】特開2009-15285号公報

【特許文献2】特開2010-152302号公報

【特許文献3】特許第5034901号公報

【特許文献4】国際公開第2009/96050号

【特許文献5】特許第4817710号公報

【特許文献6】特開2011-256394号公報

【特許文献7】国際公開第2011/114995号

## 【発明の概要】

## 【発明が解決しようとする課題】

## 【0009】

本発明は、上記事情に鑑みなされたものであり、ポリイミド、ポリアミドのような高極性、耐熱性に優れた有機材料と金属材料とを接合するときの密着向上に有用なアミック酸構造基を有するシランカップリング剤及びその製造方法、該シランカップリング剤を含有するプライマー組成物並びに塗料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】

## 【0010】

本発明者は、上記目的を達成するために鋭意検討を重ねた結果、下記一般式（1）で表される有機ケイ素化合物の混合物からなるシランカップリング剤、特に下記一般式（2）で示される無水コハク酸官能基を有するシランカップリング剤と、下記一般式（3）で示される第一級及び／又は第二級アミン化合物とを、沸点140℃以上の非プロトン性有機溶媒中で反応させた後、有機溶媒の沸点以上に加熱し、有機溶媒を留去しながらシランカップリング剤構造中のカルボン酸基とアルコキシシリル基の脱アルコール反応を進行させることにより得られる上記シランカップリング剤が、ポリイミド、ポリアミドのような高極性、耐熱性に優れた有機材料と金属材料との密着向上効果に優れることを見出し、本発明をなすに至った。

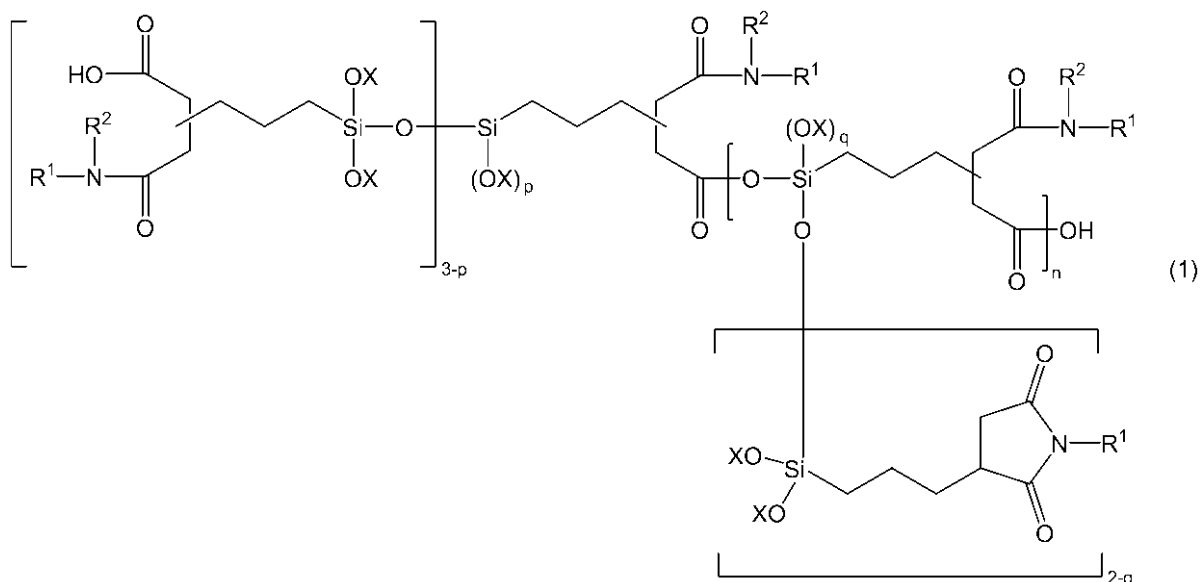
## 【0011】

従って、本発明は、下記のシランカップリング剤及びその製造方法、該シランカップリング剤を含有するプライマー組成物並びに塗料組成物を提供する。

## 〔1〕

下記一般式（1）で表される有機ケイ素化合物の混合物からなるシランカップリング剤。

## 【化 1】



10

(式中、 $R^1$ は独立に炭素数1～10のアルキル基、又は炭素数6～10のアリール基であり、 $R^2$ は独立に水素原子、炭素数1～10のアルキル基、又は炭素数6～10のアリール基であり、Xは独立に炭素数1～10のアルキル基、又は炭素数6～10のアリール基であり、nは1以上の整数、pは0～3の整数、qは0～2の整数である。)

20

## 〔 2 〕

上記  $R^2$  が水素原子である〔 1 〕記載のシランカップリング剤。

## 〔 3 〕

上記  $R^1$  が *tert*-ブチル基又はフェニル基である〔 2 〕記載のシランカップリング剤。

## 〔 4 〕

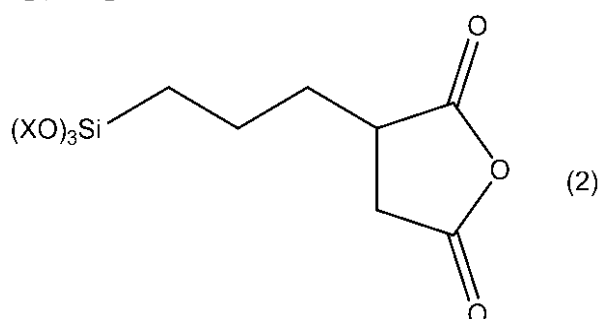
ゲルパーミエーションクロマトグラフィーにおいて、ポリスチレン換算の重量平均分子量が850以上であり、且つ重量平均分子量600以上の有機ケイ素化合物を50質量%以上含むことを特徴とする〔 1 〕～〔 3 〕のいずれかに記載のシランカップリング剤。

## 〔 5 〕

下記一般式 ( 2 )

30

## 【化 2】

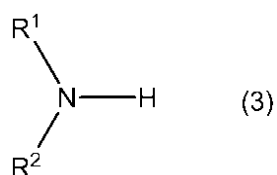


40

(式中、Xは上記と同じである。)

で示される無水コハク酸官能基を有するシランカップリング剤と、下記一般式 ( 3 )

## 【化 3】



(式中、 $R^1$ 、 $R^2$ は上記と同じである。)

50

で示される第一級及び／又は第二級アミン化合物とを、沸点 140℃以上の非プロトン性有機溶媒中で反応させた後、有機溶媒の沸点以上に加熱し、有機溶媒を留去しながらシランカップリング剤構造中のカルボン酸基とアルコキシシリル基の脱アルコール反応を進行させることを特徴とする〔1〕～〔4〕のいずれかに記載のシランカップリング剤の製造方法。

〔6〕

上記沸点 140℃以上の非プロトン性有機溶媒が、プロピレングリコールモノメチルエーテルアセテート、シクロヘキサノン、及びN-メチルピロリドンから選択されることを特徴とする〔5〕記載シランカップリング剤の製造方法。

〔7〕

〔1〕～〔4〕のいずれかに記載のシランカップリング剤を含むプライマー組成物。

〔8〕

〔1〕～〔4〕のいずれかに記載のシランカップリング剤を含む塗料組成物。

〔9〕

感光性耐熱性材料用である〔8〕記載の塗料組成物。

〔10〕

〔8〕又は〔9〕記載の塗料組成物の硬化膜を形成してなる物品。

【発明の効果】

【0012】

本発明のアミック酸構造基を有するシランカップリング剤は、高温加熱留去反応を経ることにより、構造中のカルボン酸基とアルコキシシリル基の間で脱アルコール反応が生じ、分子架橋した高分子成分が、前記モノマー成分（従来のアミック酸構造基を有するシランカップリング剤）に比べて良好な密着向上効果を発現する。

【図面の簡単な説明】

【0013】

【図1】本発明の実施例1で得られた反応生成物のGPCチャートである。

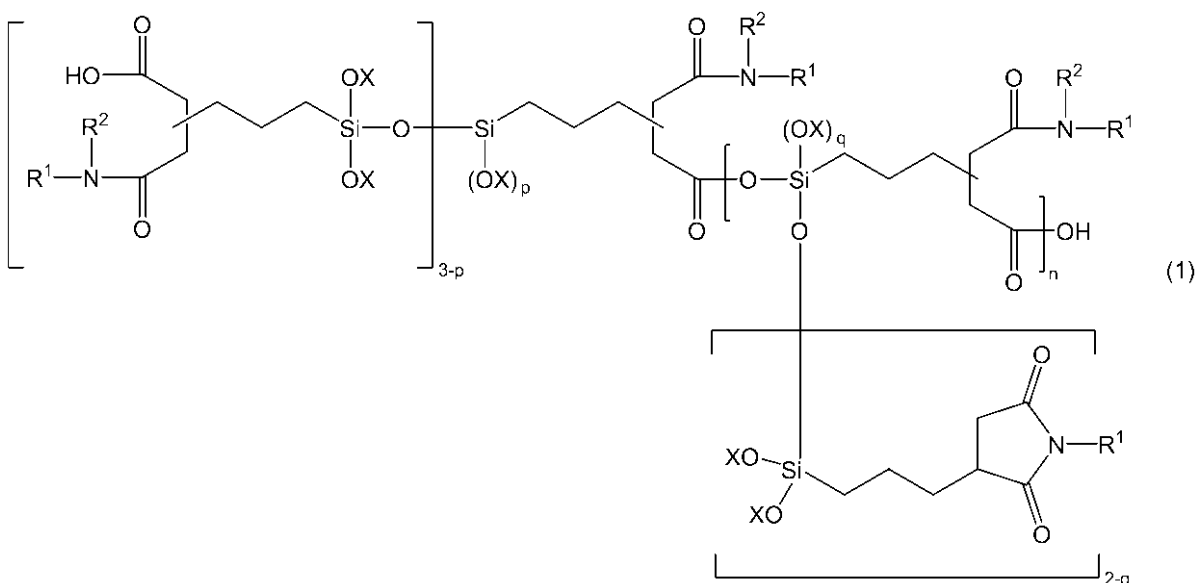
【発明を実施するための形態】

【0014】

以下、本発明について具体的に説明する。

本発明のシランカップリング剤は、下記一般式（1）にて示すことができる。

【化4】



（式中、R<sup>1</sup>は独立に炭素数1～10のアルキル基、又は炭素数6～10のアリール基であり、R<sup>2</sup>は独立に水素原子、炭素数1～10のアルキル基、又は炭素数6～10のアリール基であり、Xは独立に炭素数1～10のアルキル基、又は炭素数6～10のアリール基であり、nは1以上の整数、pは0～3の整数、qは0～2の整数である。）

## 【0015】

上記 $R^1$ は、独立に炭素数1～10のアルキル基、又は炭素数6～10のアリール基であり、炭素数1～10のアルキル基としては、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、tert-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、シクロヘキシル基などが挙げられ、炭素数6～10のアリール基としては、フェニル基、ナフチル基などが挙げられる。これらの中でも好ましくは入手のし易さと生成物の低着色性、発現耐熱性から、tert-ブチル基、フェニル基が好ましい。

## 【0016】

上記 $R^2$ は、独立に水素原子、炭素数1～10のアルキル基、又は炭素数6～10のアリール基であり、炭素数1～10のアルキル基としては、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、tert-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、シクロヘキシル基などが挙げられ、炭素数6～10のアリール基としては、フェニル基、ナフチル基などが挙げられる。これらの中でも好ましくは入手のし易さと生成物の低着色性、発現耐熱性から、水素原子が好ましい。

10

## 【0017】

先述したとおり、本発明の要点は、高温留去によるカルボン酸基とアルコキシシリル基との脱アルコール架橋、高分子化であるが、 $R^2$ が水素原子である場合、アミック酸構造のイミド化が生じる可能性がある。その場合、反応により水が副生し、それがアルコキシシリル基間の加水分解縮合により消費される。それによる高分子化も密着向上に有効である。

20

## 【0018】

上記Xは、独立に炭素数1～10のアルキル基、又は炭素数6～10のアリール基であり、炭素数1～10のアルキル基としては、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、tert-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、シクロヘキシル基などが挙げられ、炭素数6～10のアリール基としては、フェニル基、ナフチル基などが挙げられる。これらの中でも前駆原料としての入手のし易さから、メチル基、エチル基が好ましい。

## 【0019】

上記nは、カルボン酸基とアルコキシシリル基との脱アルコール架橋反応による架橋度を示す。nは1以上の整数であり、好ましくは十分な密着特性が得られる2以上である。1未満( $n=0$ )は単にコハク酸無水物含有シランカップリング剤とアミンが反応しただけの状態であり、十分な密着向上性が発現しない。 $n=20$ を超える値では密着性発現に問題はないものの、非常に高分子であるため溶液状態での安定性が不十分となるおそれがある他、先述した脱アルコール架橋反応に費やす有機溶媒、留去時間を鑑みると生産性が低くなるおそれがあるため、最も好ましくは2～20の値である。

30

上記pは0～3の整数であり、上記qは0～2の整数である。

## 【0020】

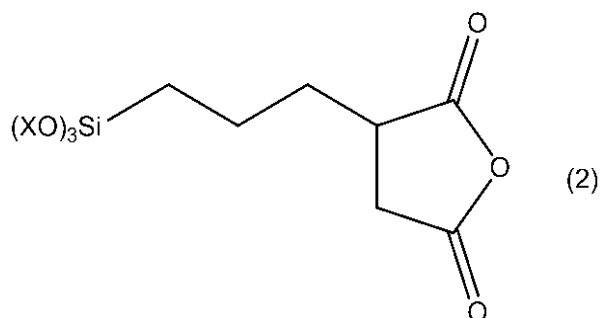
本発明のシランカップリング剤は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィーにおいて、ポリスチレン換算の重量平均分子量が850以上、好ましくは850～6,500、且つ重量平均分子量600以上の成分が50質量%以上、好ましくは55～90質量%であることを特徴とする。これらの範囲未満である場合には、先述した架橋反応が十分に進行していないため、所望の密着性が発現しない。また、重量平均分子量が6,500を超える値又は重量平均分子量600以上の成分が90質量%を超える値では密着性発現に問題はないものの、非常に高分子量の成分が多くなるため溶液状態での安定性が不十分となるおそれがある他、先述した脱アルコール架橋反応に費やす有機溶媒、留去時間を鑑みると生産性が低くなるおそれがある。

40

## 【0021】

本発明のシランカップリング剤の製造方法は、下記一般式(2)

## 【化 5】

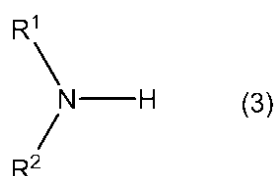


10

(式中、Xは上記と同じである。)

で示される無水コハク酸官能基を有するシランカップリング剤と、下記一般式(3)

## 【化 6】



(式中、 $R^1$ 、 $R^2$ は上記と同じである。)

で示される第一級及び／又は第二級アミン化合物とを、沸点140℃以上の非プロトン性有機溶媒中で反応させた後、有機溶媒の沸点以上に加熱し、有機溶媒を留去しながらシランカップリング剤構造中のカルボン酸基とアルコキシシリル基の脱アルコール反応を進行させることを特徴とするものである。

20

## 【0022】

上記一般式(2)の具体的化合物としては、トリメトキシシリルプロピル無水コハク酸、トリエトキシシリルプロピル無水コハク酸が挙げられ、入手の容易さからトリメトキシシリルプロピルコハク酸無水物(信越化学工業社製：X-12-967C)が好ましい。

## 【0023】

上記一般式(3)の具体的化合物としては、入手の容易さと得られる生成物の低着色性、発現耐熱性からtert-ブチルアミン、アニリンが好ましい。

30

## 【0024】

製造に使用する有機溶媒としては、高沸点、例えば140℃以上の沸点、且つ非プロトン性であることが望ましい。更にシランカップリング剤成分の溶解性の観点より高極性であることがより望ましい。具体的には、ポリイミドの製造に一般使用されるプロピレングリコールモノメチルエーテルアセテート、シクロヘキサノン、N-メチルピロリドンなどが挙げられる。

## 【0025】

式(2)で示される無水コハク酸官能基を有するシランカップリング剤と、式(3)で示される第一級及び／又は第二級アミン化合物とを、沸点140℃以上の非プロトン性有機溶媒中で反応させる。この場合の反応条件は特に限定されるものではないが、50～200℃、特に60～140℃の温度で、30分～24時間、特に1～10時間反応させることが好ましい。

40

## 【0026】

その後、有機溶媒の沸点以上、具体的に140～190℃に加熱して有機溶媒を留去しながらシランカップリング剤構造中のカルボン酸基とアルコキシシリル基の脱アルコール反応を進行させる。脱アルコール反応に必要な温度は必ずしも上述条件の限りではないが、例えば140℃未満の場合、反応効率は低く、所望の架橋度に達しないおそれがある。また、脱アルコール反応は1～24時間、特に2～20時間行うことが好ましい。

## 【0027】

本発明のシランカップリング剤の用途としては、プライマー剤、樹脂組成物の密着向上

50



剤が挙げられ、本発明のシランカップリング剤を含むプライマー組成物や、塗料組成物、好ましくは感光性耐熱性材料用の塗料組成物として好適に使用し得る。

#### 【0028】

プライマー剤として用いる場合、プライマー組成物中のその他の成分は、レベリング剤、チキソ剤、希釈溶媒などが挙げられ、これらはいずれも市販されている一般品を使用することができる。

プライマー組成物へ配合する場合、シランカップリング剤の使用量は、基本的に所望とする密着向上を達成する濃度で使用して構わないが、一般には組成物中0.1～50質量%であり、より好ましくは1～40質量%である。0.1質量%未満では十分な密着向上効果が発現しないおそれがあり、上記上限値を超える量ではプライマー層が厚くなり密着効果が飽和する他、厚膜部分の破壊により逆に密着性が低下するおそれもある。

#### 【0029】

密着向上剤としての具体的な事例としては、背景技術にて紹介した感光性樹脂組成物（感光性耐熱性材料用の塗料組成物）の対金属（例えば、シリコン、アルミニウム、ニッケル、モリブデン、クロム、パラジウム、コバルト、ジルコニウム、銅）密着向上が挙げられる。感光性樹脂組成物としては、公知とされるフォトレジスト材料の組成に適用可能であるが、具体的には、ポリイミド樹脂の前駆体であるポリアミド酸、ポリアミド酸エステル、及びポリアミド酸アミド、ポリベンゾオキサゾール樹脂の前駆体であるヒドロキシポリアミド、耐熱性ポリアミド樹脂、並びにクレゾールノボラック系フェノール樹脂等を主成分とする樹脂組成物が挙げられる。これらの中でもポリイミドの前駆体、又はポリベンゾオキサゾール樹脂の前駆体を含有する樹脂組成物の密着向上成分として好適に用いられる。

#### 【0030】

該樹脂組成物中において、本発明のシランカップリング剤の使用量は、耐熱性樹脂前駆体100質量部に対して0.1～30質量部、特に1～20質量部であることが好ましい。0.1質量部未満では所望の密着向上が発現しない。一方30質量部を超える量ではワニスの安定性を損なうおそれがある。

#### 【実施例】

#### 【0031】

以下、実施例、比較例及び合成例を示して本発明をより詳しく説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。なお、下記例中、粘度はオストワルド計粘度計により測定した動粘度であり、重量平均分子量はテトラヒドロフランを展開溶媒としたゲルパーミエーションクロマトグラフィー（GPC）の標準ポリスチレン換算による値であり、反応生成物の組成（n, p, q）は重量平均分子量から換算した理論値である。また、下記の例において、部は質量部を示す。

#### 【0032】

〈シランカップリング剤の製造〉

#### 〔実施例1〕

攪拌機、還流冷却器及び温度計を備えた500mlセパラブルフラスコに、プロピレングリコールモノメチルエーテルアセテート450.0部、トリメトキシシリルプロピルコハク酸無水物（信越化学工業社製：X-12-967C）38.3部、tert-ブチルアミン11.7部を納め攪拌混合した。内温70℃で1時間加熱攪拌し、その後、熱媒の温度を170℃として溶媒の沸点（約146℃）で溶媒と架橋反応により発生するメタノールを常圧留去した。理論固形分が30質量%となる留分が除去された段階で反応終了とし、得られた反応生成物は105℃、3時間条件での不揮発分が27.6質量%であり、粘度（25℃）が6.4mm<sup>2</sup>/sの淡黄色透明液体であった。得られた反応生成物（シランカップリング剤）のGPCチャートを図1に示す。シランカップリング剤の重量平均分子量は890であり、重量平均分子量600以上の成分はポリマー全体の58質量%であり、式（1）において、n, p, qは、平均値としてn=4、p=2.3、q=1.4であった。

## 【0033】

## [実施例2]

実施例1における使用原料であるトリメトキシシリルプロピルコハク酸無水物を、トリエトキシシリルプロピルコハク酸無水物に変更した以外は同様にして反応を行った。得られた反応生成物は105℃、3時間条件での不揮発分が24.7質量%であり、粘度(25℃)が4.6mm<sup>2</sup>/sの淡黄色透明液体であった。得られた反応生成物(シランカップリング剤)の重量平均分子量は940であり、重量平均分子量600以上の成分はポリマー全体の61質量%であり、式(1)において、n, p, qは、平均値としてn=2、p=2.6、q=1.6であった。

## 【0034】

## [比較例1]

攪拌機、還流冷却器及び温度計を備えた500mlセパラブルフラスコに、プロピレングリコールモノメチルエーテルアセテート116.0部、トリメトキシシリルプロピルコハク酸無水物(信越化学工業社製:X-12-967C)38.3部、tert-ブチルアミン11.7部を納め、内温40℃で1時間加熱攪拌混合した。得られた反応生成物は105℃、3時間条件での不揮発分が29.7質量%であり、粘度(25℃)が5.0mm<sup>2</sup>/sの淡黄色透明液体であった。得られた反応生成物(シランカップリング剤)の重量平均分子量は420であり、重量平均分子量600以上の成分はポリマー全体の5質量%であり、式(1)において、n, p, qは、n=0、p=3、q=0であった。

## 【0035】

〈耐熱性樹脂前駆体の合成〉特許第4817710号公報の参考例1追試

## [合成例1]

攪拌機、還流冷却器、滴下ロート及び温度計を備えた5Lセパラブルフラスコに、2,2-ビス(3-アミノ-4-ヒドロキシフェニル)-ヘキサフルオロプロパン432.6部、ピリジン59.3部、及びN,N-ジメチルアセトアミド1,510部を室温(25℃)で攪拌混合し、溶解させた。この中に、別途γ-ブチロラクトン95部に4-メチルシクロヘキサン-1,2-ジカルボン酸無水物18.9部を溶解させたものを滴下ロートにより滴下した。滴下終了後、室温(25℃)で2時間攪拌した後、ドライアイス浴により-10℃まで冷却した。この中にγ-ブチロラクトン1,600部に4,4'-ジフェニルエーテルジカルボン酸ジクロリド299部とイソフタル酸ジクロリド22.8部を溶解させたものを滴下ロートにより滴下した。

上記反応液を滴下終了後、冷媒を取り外し、15時間攪拌後ピリジン119部を加えた。この反応液を水中に投入し、ポリマー生成物を分散析出、回収し、適宜洗浄並びに乾燥を経ることで目的物である耐熱樹脂前駆体のヒドロキシポリアミド材料を得た。本ポリマー材料のGPCによる重量平均分子量は28,000であった。

## 【0036】

〈密着評価用ワニスサンプルの調製、密着性評価〉

## [実施例3, 4、比較例2, 3]

実施例1, 2並びに比較例1で得られたシランカップリング剤の固形分換算で5部、合成例1で得られたポリマー100部を表1記載の組み合わせでγ-ブチロラクトンに溶解した後、0.2μmの捕捉粒径を有するフィルターを通過させ評価用ワニスを得た。

## 【0037】

上記で得られたワニスサンプルをシリコンウエハー上にスピンコートし、120℃、3分間乾燥後、イナータオープン中で窒素雰囲気下250℃、1時間熱処理して耐熱性樹脂膜を形成した。得られた形成膜並びに該形成膜をプレッシャークッカー(130℃、3気圧)で100時間処理したPCT(プレッシャークッカーテスト)後サンプルについて、JIS K4500に準拠する基盤目密着試験を実施した結果を表1に記載した。

## 【0038】

10

20

30

40

【表 1】

|      | シランカップリング剤 | 基盤目密着試験結果 |        |
|------|------------|-----------|--------|
|      |            | PCT前      | PCT処理後 |
| 実施例3 | 実施例1       | 100       | 100    |
| 実施例4 | 実施例2       | 100       | 100    |
| 比較例2 | 比較例1       | 100       | 40     |
| 比較例3 | なし         | 0         | 0      |

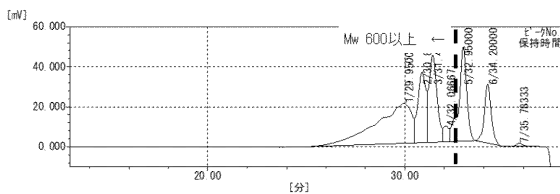
10

## 【0039】

本発明のシランカップリング剤を含むワニスを硬化させて得た耐熱性樹脂膜は、PCT処理後も高い接着性を示すことが分かった。

以上の実施例及び比較例の結果は、本発明のシランカップリング剤がポリイミド系材料に対して良好な密着向上剤であることを実証するものである。

【図 1】



---

フロントページの続き

|             |         |      |             |
|-------------|---------|------|-------------|
| (51)Int.Cl. | F I     |      | テーマコード (参考) |
|             | C 0 7 F | 7/18 | X           |
|             | C 0 7 F | 7/18 | T           |

(72)発明者 土田 和弘

群馬県安中市松井田町人見 1 番地 1 0 信越化学工業株式会社 シリコン電子材料技術研究所内  
F ターム(参考) 4H049 VN01 VP04 VP08 VP10 VQ37 VQ59 VQ78 VR21 VR43 VS57  
VU22 VV09 VW33 VW35  
4J038 DH001 DJ031 DL082 MA07 MA09 NA12 PA07 PC02