

(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  
2018年7月5日(05.07.2018)



(10) 国際公開番号  
**WO 2018/124230 A1**

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

(21) 国際出願番号: PCT/JP2017/047089

(22) 国際出願日: 2017年12月27日(27.12.2017)

(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 2016-255099 2016年12月28日(28.12.2016) JP

(71) 出願人: ニッタ・ハース株式会社(NITTA HAAS INCORPORATED) [JP/JP]; 〒5560022 大阪府大阪市浪速区桜川4丁目4番26号 Osaka (JP).

(72) 発明者: 松田 修平 (MATSUDA, Shuhei); 〒6100333 京都府京田辺市甘南備台3-17-1 ニッタ・ハース株式会社 京都工場内 Kyoto

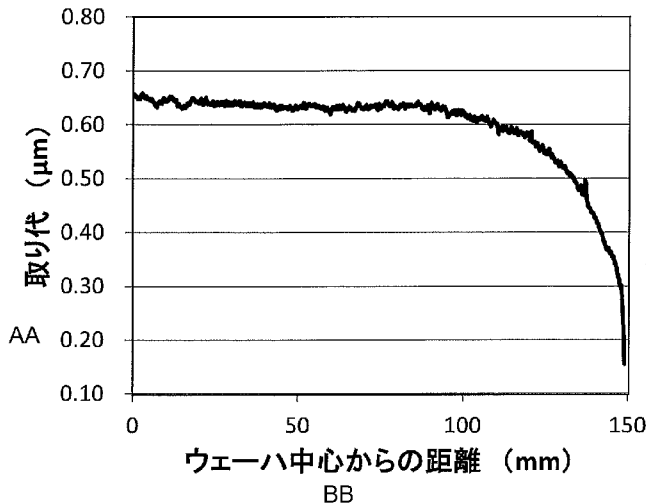
(JP). 杉田 規章(SUGITA, Noriaki); 〒6100333 京都府京田辺市甘南備台3-17-1 ニッタ・ハース株式会社 京都工場内 Kyoto (JP). 松下 隆幸(MATSUSHITA, Takayuki); 〒6100333 京都府京田辺市甘南備台3-17-1 ニッタ・ハース株式会社 京都工場内 Kyoto (JP).

(74) 代理人: 上羽 秀敏, 外(UEBA Hidetoshi et al.); 〒5300003 大阪府大阪市北区堂島1丁目1番5号 ザイマックス梅田新道ビル インテリクス国際特許事務所 Osaka (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, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ,

(54) Title: POLISHING COMPOSITION

(54) 発明の名称: 研磨用組成物



AA Machining allowance (μm)  
BB Distance from wafer center (mm)

(57) Abstract: Provided is a polishing composition which enables the achievement of an excellent wafer shape, while maintaining an adequate polishing rate and surface smoothness. This polishing composition contains abrasive grains, a basic compound, and two or more water-soluble polymers; the concentration ratio in term of weight percentage of the abrasive grains to each one of the two or more water-soluble polymers, namely (abrasive grain):(water-soluble polymer) is 1:0.0001 to 1:0.0010; one of the two or more water-soluble polymers is a water-soluble polymer wherein the number of hydroxy groups or lactam structures in each molecule is less than 10; and another one of the two or more water-soluble polymers is a water-soluble polymer wherein the number of hydroxy groups or lactam structures in each molecule is 10 or more.



WO 2018/124230 A1

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))

---

(57) 要約 : 研磨速度及び表面平滑性を維持しつつ、良好なウェーハ形状が得られる研磨用組成物を提供する。砥粒と、塩基性化合物と、二種以上の水溶性高分子とを含み、砥粒と二種以上の水溶性高分子のそれぞれとの重量%濃度比が、砥粒 : 水溶性高分子 = 1 : 0.0001 ~ 1 : 0.0010 であり、二種以上の水溶性高分子のうちの一つが、1分子中のヒドロキシ基又はラクタム構造の数が10未満である水溶性高分子であり、二種以上の水溶性高分子のうち他の一つが、1分子中のヒドロキシ基又はラクタム構造の数が10以上である水溶性高分子である。

## 明 細 書

発明の名称： 研磨用組成物

### 技術分野

[0001] 本発明は、研磨用組成物に関する。

### 背景技術

[0002] CMPによるシリコンウェーハの研磨は、3段階又は4段階の多段階の研磨を行うことで、高精度の平滑化・平坦化を実現している。近年、ウェーハの表面品質に対する要求が厳しくなるのにもなって、二次研磨においても、より高水準の平滑性・平坦性を得られることが求められている。

[0003] 研磨用組成物に水溶性高分子を加えることで、ウェーハの表面粗さを低減できることが知られている（例えば、特許第5505987号公報を参照）。

### 発明の開示

[0004] 研磨用組成物に水溶性高分子を加えると、表面粗さは低減できるものの、研磨速度が低下するという問題がある。また、研磨速度や表面粗さだけではなく、ウェーハ形状に対してもより厳しい制御が求められている。

[0005] 本発明の目的は、研磨速度及び表面平滑性を維持しつつ、良好なウェーハ形状が得られる研磨用組成物を提供することである。

[0006] 本発明の一実施形態による研磨用組成物は、砥粒と、塩基性化合物と、二種以上の水溶性高分子とを含み、砥粒と二種以上の水溶性高分子のそれぞれとの重量%濃度比が、砥粒：水溶性高分子＝1：0.0001～1：0.0010であり、前記二種以上の水溶性高分子のうちの一つが、1分子中のヒドロキシ基又はラクタム構造の数が10未満である水溶性高分子であり、前記二種以上の水溶性高分子のうち他の一つが、1分子中のヒドロキシ基又はラクタム構造の数が10以上である水溶性高分子である。

[0007] 本発明の一実施形態による研磨用組成物は、二種以上の水溶性高分子のうちの一つが、下記一般式（1）で示される2つの窒素有するアルキレンジ

アミン構造を含み、該アルキレンジアミン構造の2つの窒素に、少なくとも1つのブロック型ポリエーテルが結合されたジアミン化合物であって、該ブロック型ポリエーテルが、オキシエチレン基とオキシプロピレン基とが結合してなるジアミン化合物であってもよい。

[0008] [化1]



(式中、nは1以上の整数を示す。)

[0009] 本発明の一実施形態による研磨用組成物は、二種以上の水溶性高分子のうちの他の一種が、ヒドロキシエチルセルロースであってもよい。

[0010] 本発明の一実施形態による研磨用組成物は、好ましくは、二種以上の水溶性高分子のうちの一種が、上述したジアミン化合物であり、二種以上の水溶性高分子のうちの他の一種が、ヒドロキシエチルセルロースである。

[0011] 本発明によれば、研磨速度及び表面平滑性を維持しつつ、良好なウェーハ形状が得られる。

### 図面の簡単な説明

[0012] [図1]図1は、差分GBIRを説明するための図である。

[図2]図2は、水溶性高分子を含有しない研磨用組成物で研磨したときの研磨量(取り代)のプロファイルである。

[図3]図3は、ポロキサミンを含有する研磨用組成物で研磨したときの研磨量(取り代)のプロファイルである。

[図4]図4は、HECを含有する研磨用組成物で研磨したときの研磨量(取り代)のプロファイルである。

[図5]図5は、ポロキサミン及びHECを含有する研磨用組成物で研磨したときの研磨量(取り代)のプロファイルである。

### 発明を実施するための形態

[0013] 本発明者らは、上記の課題を解決するため、種々の検討を行った。その結

果、以下の知見を得た。

[0014] 研磨後のウェーハの形状を制御するためには、研磨用組成物に二種以上の水溶性高分子を適量含有させることが有効である。二種以上の水溶性高分子は、ウェーハとの親和性の違いによって、それぞれウェーハの相対的に内側の領域と外側の領域とに作用する。さらに、二種以上の水溶性高分子のそれぞれと砥粒との濃度比を適切に制御することで、研磨速度を低下させることなく、ウェーハの形状をより高い水準で制御することができる。

[0015] 本発明は、これらの知見に基づいて完成された。以下、本発明の一実施形態による研磨用組成物を詳述する。

[0016] 本発明の一実施形態による研磨用組成物は、砥粒と、塩基性化合物と、二種以上の水溶性高分子とを含む。本実施形態による研磨用組成物は、シリコンウェーハの二次研磨に好適に用いられる。

[0017] 砥粒は、この分野で常用されるものを使用できる。砥粒は例えば、コロイダルシリカ、ヒュームドシリカ、コロイダルアルミナ、ヒュームドアルミナ、酸化セリウム、炭化ケイ素、窒化ケイ素等である。これらのうち、コロイダルシリカが好適に用いられる。

[0018] 砥粒の含有量は、特に限定されないが、例えば研磨用組成物全体の0.1～15重量%である。砥粒の含有量は、研磨速度を大きくする観点からは多い方が好ましく、研磨傷や異物残りを低減するという観点からは少ない方が好ましい。砥粒の含有量の下限は、好ましくは0.5重量%であり、さらに好ましくは1重量%である。砥粒の含有量の上限は、好ましくは12重量%であり、さらに好ましくは10重量%である。

[0019] 塩基性化合物は、ウェーハの表面をエッチングして化学的に研磨する。塩基性化合物は、例えば、アミン化合物、無機アルカリ化合物等である。

[0020] アミン化合物は、例えば、第一級アミン、第二級アミン、第三級アミン、第四級アンモニウム及びその塩、複素環式アミン等である。具体的には、アンモニア、水酸化テトラメチルアンモニウム（TMAH）、水酸化テトラエチルアンモニウム（TEAH）、水酸化テトラブチルアンモニウム（TBA

H)、メチルアミン、ジメチルアミン、トリメチルアミン、エチルアミン、ジエチルアミン、トリエチルアミン、ヘキシルアミン、シクロヘキシルアミン、エチレンジアミン、ヘキサメチレンジアミン、ジエチレントリアミン (DETA)、トリエチレンテトラミン、テトラエチレンペンタミン、ペンタエチレンヘキサミン、モノエタノールアミン、ジエタノールアミン、トリエタノールアミン、N-( $\beta$ -アミノエチル)エタノールアミン、無水ピペラジン、ピペラジン六水和物、1-(2-アミノエチル)ピペラジン、N-メチルピペラジン、ピペラジン塩酸塩、炭酸グアニジン等が挙げられる。

[0021] 無機アルカリ化合物は、例えば、アルカリ金属の水酸化物、アルカリ金属の炭酸塩、アルカリ金属の炭酸水素塩、アルカリ土類金属の水酸化物、アルカリ土類金属の炭酸塩、アルカリ土類金属の炭酸水素塩等が挙げられる。無機アルカリ化合物は、具体的には、水酸化カリウム (KOH)、水酸化ナトリウム、炭酸水素カリウム、炭酸カリウム ( $K_2CO_3$ )、炭酸水素ナトリウム、炭酸ナトリウム等である。

[0022] 塩基性化合物は、上記に挙げた物質群のうち、アルカリ金属の水酸化物、アルカリ金属の炭酸塩、アルカリ土類金属の水酸化物、アルカリ土類金属の炭酸塩、第四級アンモニウム、又は第四級アンモニウムの塩が好適に用いられる。上述のとおり、本実施形態による研磨用組成物は、シリコンウェーハの二次研磨に好適に用いられる。仕上げ研磨 (ファイナル研磨) 用の研磨用組成物では、純度の要求が非常に高いため、アルカリ金属等の含有量が制限されるのに対し、二次研磨用の研磨用組成物では、仕上げ研磨用の研磨用組成物に比べて、研磨レートが要求される。そのため、二次研磨用の研磨用組成物では、化学的研磨作用の強い塩基性化合物を用いることが好ましい。

[0023] 上述した塩基性化合物は、一種を単独で使用してもよいし、二種以上を混合して使用してもよい。塩基性化合物の合計の含有量は、特に限定されないが、例えば研磨用組成物全体の0.1~5重量%である。塩基性化合物の含有量の下限は、好ましくは0.5重量%である。塩基性化合物の含有量の上限は、好ましくは3重量%である。

- [0024] 本実施形態による研磨用組成物は、二種以上の水溶性高分子を含む。水溶性高分子は、ウェーハの表面に吸着して、ウェーハの表面を改質する。これによって研磨の均一性が向上し、表面粗さを低減することができる。
- [0025] 水溶性高分子は、例えば、ヒドロキシエチルセルロース（HEC）、ヒドロキシプロピルセルロース、カルボキシメチルセルロース、酢酸セルロース、メチルセルロース等のセルロース類、ポリビニルアルコール（PVA）、ポリビニルピロリドン（PVP）等のビニルポリマー、配糖体（グリコシド）、ポリエチレングリコール、ポリプロピレングリコール、ポリグリセリン、ポロキサミン、ポロキサマー、ポリオキシアルキレンアルキルエーテル、ポリオキシアルキレン脂肪酸エステル、ポリオキシアルキレンアルキルアミン、メチルグルコシドのアルキレンオキシド誘導体（後述）、多価アルコールアルキレンオキシド付加物、多価アルコール脂肪酸エステル等が挙げられる。
- [0026] 研磨時、これら二種以上の水溶性高分子は、ウェーハとの親和性の違いに応じて、それぞれウェーハの相対的に内側の領域と外側の領域とに作用する。これによって、ウェーハの形状をより高い水準で制御することができる。
- [0027] 本実施形態による研磨用組成物では、二種以上の水溶性高分子のそれぞれと砥粒との重量%濃度比が、砥粒：水溶性高分子＝1：0.0001～1：0.0010である。
- [0028] 砥粒：水溶性高分子＝1：0.0001よりも水溶性高分子が少なくなると、その水溶性高分子の作用が十分に得られず、二種以上の水溶性高分子を含有させたことによる効果が十分に得られなくなる。その結果、目標とするウェーハ形状が得られなくなる。一方、砥粒：水溶性高分子＝1：0.0010よりも水溶性高分子が多くなると、研磨速度が低下する。また、二種以上の水溶性高分子を含有させたことによる効果が十分に得られなくなり、やはり目標とするウェーハ形状が得られなくなる。二種以上の水溶性高分子のそれぞれと砥粒との重量%濃度比の上限は、好ましくは水溶性高分子／砥粒で0.0009であり、さらに好ましくは水溶性高分子／砥粒で0.000

7である。

[0029] 水溶性高分子のうちの一つは、下記一般式（1）で示される2つの窒素有するアルキレンジアミン構造を含み、該アルキレンジアミン構造の2つの窒素に、少なくとも1つのブロック型ポリエーテルが結合されたジアミン化合物であって、該ブロック型ポリエーテルが、オキシエチレン基とオキシプロピレン基とが結合してなるジアミン化合物（以下「ブロック型ポリエーテルが結合されたジアミン化合物」という。）であることが好ましい。

[0030] [化1]



（式中、nは1以上の整数を示す。）

[0031] ブロック型ポリエーテルは、下記一般式（2）～（5）で示されるエーテル基から選ばれる少なくとも一種を用いることができる。

[0032]  $-(\text{EO})_a-(\text{PO})_b)_x-\text{H} \dots (2)$

$-(\text{PO})_b-(\text{EO})_a)_x-\text{H} \dots (3)$

$-(\text{EO})_a-[(\text{PO})_b-(\text{EO})_a]_x-\text{H} \dots (4)$

$-(\text{PO})_b-[(\text{EO})_a-(\text{PO})_b]_x-\text{H} \dots (5)$

式中、EOはオキシエチレン基、POはオキシプロピレン基を表し、a、b、xは1以上の整数である。好ましくは、オキシエチレン基の数aは1～500であり、オキシプロピレン基の数bは1～200である。好ましくは、オキシエチレン基とオキシプロピレン基との質量比が、EO：PO＝10：90～80：20である。

[0033] ブロック型ポリエーテルが結合されたジアミン化合物の具体例としては、N，N，N'，N'-テトラキス・ポリオキシエチレン・ポリオキシプロピレン・エチレンジアミン（ポロキサミン）が挙げられる。

[0034] 水溶性高分子のうちの一つは、HECであることが好ましい。

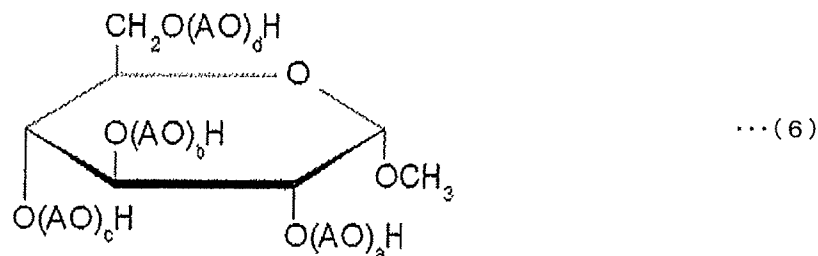
[0035] 研磨用組成物が含有する二種以上の水溶性高分子として、ウェーハ表面に



濡れ性を付与しない水溶性高分子から一種以上、ウェーハ表面に濡れ性を付与する水溶性高分子から一種以上を選択する。

[0036] ウェーハ表面に濡れ性を付与しない水溶性高分子は、1分子中のヒドロキシ基又はラクタム構造の数が10未満（ヒドロキシ基及びラクタム構造の両方がある場合にはその合計が10未満）である水溶性高分子を指す。ウェーハ表面に濡れ性を付与しない水溶性高分子としては、例えば、上述したポロキサミンの他、ポロキサマー、ポリオキシアルキレンアルキルエーテル、ポリオキシアルキレン脂肪酸エステル、ポリオキシアルキレンアルキルアミン、及び下記一般式（6）で示されるメチルグルコシドのアルキレンオキシド誘導体、多価アルコールアルキレンオキシド付加物、多価アルコール脂肪酸エステル、ポリエチレングリコール、ポリプロピレングリコール等が挙げられる。

[0037] [化2]



(式中、AOはアルキレンオキシドを示す。また、a~dは整数を示す。)

[0038] ポリオキシアルキレンアルキルエーテルは具体的には、ポリオキシエチレンラウリルエーテル、ポリオキシエチレンセチルエーテル、ポリオキシエチレンステアリルエーテル等である。ポリオキシアルキレン脂肪酸エステルは具体的には、ポリオキシエチレンモノラウレート、ポリオキシエチレンモノステアレート等である。ポリオキシアルキレンアルキルアミンは具体的には、ポリオキシエチレンラウリルアミン、ポリオキシエチレンオレイルアミン等である。メチルグルコシドのアルキレンオキシド誘導体は例えば、ポリオキシエチレンメチルグルコシド、ポリオキシプロピレンメチルグルコシド等である。多価アルコールアルキレンオキシド付加物は具体的には、グリセリ

ン、ペンタエリスリトール、エチレングリコール等のアルキレンオキシド付加物等が挙げられる。

[0039] ウェーハ表面に濡れ性を付与する水溶性高分子は、1分子中のヒドロキシ基又はラクタム構造の数が10以上（ヒドロキシ基及びラクタム構造の両方がある場合にはその合計が10以上）である水溶性高分子を指す。ウェーハ表面に濡れ性を付与する水溶性高分子は、例えば、ヒドロキシエチルセルロース（HEC）、ヒドロキシプロピルセルロース、カルボキシメチルセルロース、酢酸セルロース、メチルセルロース等のセルロース類、ポリビニルアルコール（PVA）、ポリビニルピロリドン（PVP）等のビニルポリマー、配糖体（グリコシド）、ポリグリセリン等が挙げられる。

[0040] 研磨用組成物が含有する二種以上の水溶性高分子は、一種をポロキサミン、ポロキサマー、ポリオキシエチレンメチルグルコシド、ポリオキシプロピレンメチルグルコシドからなる群から選択し、他の一種をHEC、PVA、PVP、ポリグリセリンからなる群から選択することが好ましい。研磨用組成物が含有する二種以上の水溶性高分子は、さらに好ましくは、一種をポロキサミンとし、他の一種をHECとする。

[0041] 本実施形態による研磨用組成物は、上記に加えて、キレート剤を含んでもよい。キレート剤は、例えば、アミノカルボン酸系キレート剤、有機スルホン酸キレート剤等である。

[0042] アミノカルボン酸系キレート剤としては、具体的には、エチレンジアミン四酢酸、エチレンジアミン四酢酸ナトリウム、ニトリロ三酢酸、ニトリロ三酢酸ナトリウム、ニトリロ三酢酸アンモニウム、ヒドロキシエチルエチレンジアミン三酢酸、ヒドロキシエチルエチレンジアミン三酢酸ナトリウム、ジエチレントリアミン五酢酸（DTPA）、ジエチレントリアミン五酢酸ナトリウム、トリエチレントトラミン六酢酸、トリエチレントトラミン六酢酸ナトリウム等が挙げられる。

[0043] 有機ホスホン酸系キレート剤としては、具体的には、2-アミノエチルホスホン酸、1-ヒドロキシエチリデン-1,1-ジホスホン酸、アミノトリ

(メチレンホスホン酸)、エチレンジアミンテトラキス(メチレンホスホン酸)、ジエチレントリアミンペンタ(メチレンホスホン酸)、エタン-1, 1, -ジホスホン酸、エタン-1, 1, 2-トリホスホン酸、エタン-1-ヒドロキシ-1, 1-ジホスホン酸、エタン-1-ヒドロキシ-1, 1, 2-トリホスホン酸、エタン-1, 2-ジカルボキシ-1, 2-ジホスホン酸、メタンヒドロキシホスホン酸、2-ホスホノブタン-1, 2-ジカルボン酸、1-ホスホノブタン-2, 3, 4-トリカルボン酸、 $\alpha$ -メチルホスホノコハク酸等が挙げられる。

[0044] 本実施形態による研磨用組成物は、pH調整剤をさらに含んでいてもよい。本実施形態による研磨用組成物のpHは、好ましくは8.0~12.0である。

[0045] 本実施形態による研磨用組成物は、上記の他、研磨用組成物の分野で一般に知られた配合剤を任意に配合することができる。

[0046] 本実施形態による研磨用組成物は、砥粒、塩基性化合物、二種以上の水溶性高分子その他の配合材料を適宜混合して水を加えることによって作製される。本実施形態による研磨用組成物は、あるいは、砥粒、塩基性化合物、二種以上の水溶性高分子その他の配合材料を、順次、水に混合することによって作製される。これらの成分を混合する手段としては、ホモジナイザー、超音波等、研磨用組成物の技術分野において常用される手段が用いられる。

[0047] 以上で説明した研磨用組成物は、適当な濃度となるように水で希釈した後、シリコンウェーハの研磨に用いられる。

## 実施例

[0048] 以下、実施例によって本発明をより具体的に説明する。本発明はこれらの実施例に限定されない。

[0049] [研磨例1]

表1に示す実施例1~4、及び表2に示す比較例1~4の研磨用組成物を作製した。

[0050]

[表1]

		実施例1	実施例2	実施例3	実施例4
砥粒(コロイダルシリカ)		3重量%	3重量%	3重量%	3重量%
キレート剤	DTPA	0.01重量%	0.01重量%	0.01重量%	0.01重量%
塩基性化合物	KOH	0.3重量%	0.3重量%	0.3重量%	0.3重量%
	K <sub>2</sub> CO <sub>3</sub>	1重量%	1重量%	1重量%	1重量%
水溶性高分子(1)	ポロキサミン	0.0004重量%	0.001重量%	0.002重量%	0.003重量%
水溶性高分子(2)	HEC	0.0004重量%	0.001重量%	0.002重量%	0.003重量%
砥粒:水溶性高分子(1)		1:0.0001	1:0.0003	1:0.0007	1:0.001
砥粒:水溶性高分子(2)		1:0.0001	1:0.0003	1:0.0007	1:0.001
研磨レート		100	106	100	94
Ra		88	92	92	83
差分GBIR		50	50	54	67

[0051] [表2]

		比較例1	比較例2	比較例3	比較例4
砥粒(コロイダルシリカ)		3重量%	3重量%	3重量%	3重量%
キレート剤	DTPA	0.01重量%	0.01重量%	0.01重量%	0.01重量%
塩基性化合物	KOH	0.3重量%	0.3重量%	0.3重量%	0.3重量%
	K <sub>2</sub> CO <sub>3</sub>	1重量%	1重量%	1重量%	1重量%
水溶性高分子(1)	ポロキサミン	—	0.004重量%	0.003重量%	—
水溶性高分子(2)	HEC	—	0.004重量%	—	0.003重量%
砥粒:水溶性高分子(1)		—	1:0.0013	1:0.001	—
砥粒:水溶性高分子(2)		—	1:0.0013	—	1:0.001
研磨レート		100	89	111	117
Ra		100	88	96	100
差分GBIR		100	100	100	83

[0052] 実施例1の研磨用組成物は、砥粒として粒径70nmのコロイダルシリカを、キレート剤としてDTPAを、塩基性化合物としてKOH及びK<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>を、水溶性高分子としてポロキサミン及びHECを含有した。研磨用組成物の残部は水である。砥粒、DTPA、KOH、K<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>、ポロキサミン、及びHECの含有量はそれぞれ、3重量%、0.01重量%、0.3重量%、1重量%、0.0004重量%、及び0.0004重量%とした。砥粒とポロキサミンとの重量%濃度比、及び砥粒とHECとの重量%濃度比はともに1:0.0001である。

[0053] 実施例2～4の研磨用組成物は、実施例1の研磨用組成物をベースに、ポロキサミン及びHECの含有量を変えて、砥粒と各水溶性高分子との重量%濃度比を1:0.0003、1:0.0007、1:0.001にしたものである。

- [0054] 比較例1の研磨用組成物は、実施例1の研磨用組成物をベースに、水溶性高分子を非添加にしたものである。
- [0055] 比較例2の研磨用組成物は、実施例1の研磨用組成物をベースに、ポロキサミン及びHECの含有量を変えて、砥粒と各水溶性高分子との重量%濃度比を1:0.0013にしたものである。比較例3の研磨用組成物は、実施例4の研磨用組成物をベースに、HECを非添加にしたものである。比較例4の研磨用組成物は、実施例4の研磨用組成物をベースに、ポロキサミンを非添加にしたものである。
- [0056] これら実施例及び比較例の研磨用組成物を使用して、直径300mmのP型シリコンウェーハ(100)面の研磨を行った。研磨装置は、株式会社岡本工作機械製作所製SPP800Sを使用した。研磨パッドは、スウェードの研磨パッドを使用した。研磨用組成物を10倍に希釈して、0.6L/分の供給速度で供給した。定盤の回転速度は43rpm、ヘッドの回転速度は40rpm、研磨荷重は0.012MPaとして、4分間の研磨を行った。
- [0057] 研磨終了後、非接触表面粗さ測定機(WycoNT9300, Veeco社製)を用いて、シリコンウェーハの表面粗さRaを測定した。
- [0058] ウェーハ形状の評価は、以下に説明する「差分GBIR」を用いて行った。
- [0059] 図1は、差分GBIRを説明するための図である。まず、研磨前のシリコンウェーハの厚さ(裏面基準平面からの距離)のプロファイルP1を測定する。同様に、研磨後のシリコンウェーハの厚さのプロファイルP2を測定する。研磨前のプロファイルP1と研磨後のプロファイルP2との差分をとって、「研磨によって除去された厚さ(取り代)」のプロファイル $\Delta P$ を求める。所定のエッジ領域を除いた領域における取代のプロファイル $\Delta P$ の最大値 $\Delta P_{max}$ と最小値 $\Delta P_{min}$ との差を「差分GBIR」と定義する。
- [0060] 差分GBIRを用いてウェーハ形状を評価することで、通常のGBIRを用いる場合と比較して、研磨前のシリコンウェーハのばらつきやイレギュラーな要素による影響が緩和され、研磨工程自体の評価をより正確に行うこと

ができる。

[0061] 研磨前後のシリコンウェーハの厚さのプロファイルは、ウェーハ用平坦度検査装置（Nonometro 300TT-A、黒田精工株式会社製）を用いて測定した。また、取り代の平均厚さを研磨時間で除して、研磨レートとした。

[0062] 研磨レート、表面粗さRa、差分GBIRを、前掲の表1及び表2に示す。表1及び表2の研磨レート、表面粗さRa、差分GBIRの数値は、比較例1（水溶性高分子を含有しない研磨用組成物）による値を100としたときの相対値である。本評価では、研磨レートが90以上、表面粗さRa110以下、差分GBIRが70以下となることを目標とした。

[0063] 表1に示すように、実施例1～5では、研磨レートが比較例1と同等に維持され、表面粗さRa及び差分GBIRが大きく改善していた。実施例1～4を比較すると、概ね同じ品質が得られているが、砥粒に対する水溶性高分子の濃度比が小さい実施例1及び2の方が、差分GBIRが小さくなる傾向が見られた。

[0064] 表2に示すように、比較例2は、比較例1と比較して表面粗さRaは改善していたものの、研磨レートが低下していた。また、差分GBIRは改善していなかった。これは、砥粒に対する水溶性高分子の濃度比が高すぎたためと考えられる。

[0065] 比較例3、4は、比較例1と比較して研磨レートは大きくなっていたものの、差分GBIRの改善は十分ではなかった。これは、これらの研磨用組成物が水溶性高分子を一種しか含有していなかったためと考えられる。

[0066] [研磨例2]

続いて、表3に示す比較例5～10の研磨用組成物を作製した。

[0067]

[表3]

		比較例5	比較例6	比較例7	比較例8	比較例9	比較例10
砥粒(コロイダルシリカ)		3重量%	3重量%	3重量%	3重量%	3重量%	3重量%
キレート剤	DTPA	0.01重量%	0.01重量%	0.01重量%	0.01重量%	0.01重量%	0.01重量%
塩基性化合物	KOH	0.3重量%	0.3重量%	0.3重量%	0.3重量%	0.3重量%	0.3重量%
	K <sub>2</sub> CO <sub>3</sub>	1重量%	1重量%	1重量%	1重量%	1重量%	1重量%
水溶性高分子(1)	ポロキサミン	—	—	—	—	0.004重量%	0.004重量%
水溶性高分子(2)	HEC	—	0.004重量%	0.008重量%	0.015重量%	—	0.004重量%
砥粒:水溶性高分子(1)		—	—	—	—	1:0.0013	1:0.0013
砥粒:水溶性高分子(2)		—	1:0.0013	1:0.0027	1:0.005	—	1:0.0013
研磨レート		100	94	81	81	94	94
Ra		100	84	67	63	86	70
差分GBIR		100	71	54	40	119	81

[0068] 比較例5の研磨用組成物は、比較例1と同様、実施例1の研磨用組成物をベースに、水溶性高分子を非添加としたものである。

[0069] 比較例6～8の研磨用組成物は、比較例4の研磨用組成物をベースに、HECの含有量を変えて、砥粒とHECとの重量%濃度比を1:0.0013、1:0.0027、1:0.005にしたものである。比較例9の研磨用組成物は、比較例3の研磨用組成物をベースに、ポロキサミンの含有量を変えて、砥粒とポロキサミンとの重量%濃度比を1:0.0013にしたものである。比較例10の研磨用組成物は、砥粒とポロキサミンとの重量%濃度比、及び砥粒とHECとの重量%濃度比を、ともに1:0.0013にしたものである。

[0070] これらの研磨用組成物を使用して、研磨例1と類似の条件で研磨を行った。そして、研磨例1と同様に、研磨レート、表面粗さRa、差分GBIRを求めた。結果を前掲の表3に示す。表3の研磨レート、表面粗さRa、差分GBIRの数値は、比較例5（水溶性高分子を含有しない研磨用組成物）による値を100としたときの相対値である。

[0071] 比較例6は、比較例5と比較して、差分GBIRの改善が十分ではなかった。比較例7及び8は、差分GBIRは改善していたものの、研磨レートの低下が大きかった。比較例9は、差分GBIRが、比較例5よりも悪化していた。このように、水溶性高分子が一種の場合には、含有量を調整しても、研磨レート、表面粗さRa、差分GBIRの3つの指標をバランスよく満たす条件が得られなかった。

[0072] 図2～図5はそれぞれ、比較例5（水溶性高分子なし）、比較例9（ポロキサミンのみ）、比較例6（HECのみ）、及び比較例10（ポロキサミンとHECとを併用）の研磨用組成物によって研磨したシリコンウェーハの取り代のプロファイルである。

[0073] 図2と図3との比較から、ポロキサミンは、ウェーハ中心の取り代は変化させず、ウェーハ最外周の取り代を小さくすることが分かる。

[0074] 図2と図4との比較から、HECは、ウェーハ中心の取り代を小さくし、ウェーハ最外周の取り代を大きくすることが分かる。

[0075] 図5に示すように、ポロキサミンとHECとを併用することで、ウェーハ中心から外周近傍までの取り代の変化が少なくなり、ウェーハの中心と中心から100mmの位置との間で、取り代をほぼ一定にすることができる。

[0076] [研磨例3]

続いて、表4に示す実施例5～8、表5に示す実施例10、11、比較例11～13の研磨用組成物を作製した。

[0077] [表4]

		実施例5	実施例6	実施例7	実施例8
砥粒(コロイダルシリカ)		3重量%	3重量%	3重量%	3重量%
キレート剤	DTPA	0.01重量%	0.01重量%	0.01重量%	0.01重量%
塩基性化合物	KOH	0.3重量%	0.3重量%	0.3重量%	0.3重量%
	K <sub>2</sub> CO <sub>3</sub>	1重量%	1重量%	1重量%	1重量%
水溶性高分子(1)	ポロキサミン	0.001重量%	0.001重量%	0.001重量%	—
	ポロキサマー	—	—	—	0.001重量%
	ポリオキシエチレン メチルグルコシド	—	—	—	—
	ポリオキシプロピレン メチルグルコシド	—	—	—	—
水溶性高分子(2)	HEC	—	—	—	0.001重量%
	PVA	0.001重量%	—	—	—
	PVP	—	0.001重量%	—	—
	ポリグリセリン	—	—	0.001重量%	—
砥粒:水溶性高分子(1)		1:0.0003	1:0.0003	1:0.0003	1:0.0003
砥粒:水溶性高分子(2)		1:0.0003	1:0.0003	1:0.0003	1:0.0003
研磨レート		183	134	178	119
Ra		101	97	98	101
差分GBIR		65	68	59	64

[0078]



[表5]

		実施例9	実施例10	比較例11	比較例12	比較例13
砥粒(コロイダルシリカ)		3重量%	3重量%	3重量%	3重量%	3重量%
キレート剤	DTPA	0.01重量%	0.01重量%	0.01重量%	0.01重量%	0.01重量%
塩基性化合物	KOH	0.3重量%	0.3重量%	0.3重量%	0.3重量%	0.3重量%
	K <sub>2</sub> CO <sub>3</sub>	1重量%	1重量%	1重量%	1重量%	1重量%
水溶性高分子(1)	ポロキサミン	—	—	—	0.006重量%	—
	ポロキサマー	—	—	—	—	—
	ポリオキシエチレン メチルグルコシド	0.001重量%	—	—	—	—
	ポリオキシプロピレン メチルグルコシド	—	0.001重量%	—	—	—
水溶性高分子(2)	HEC	0.001重量%	0.001重量%	—	—	0.006重量%
	PVA	—	—	—	—	—
	PVP	—	—	—	—	—
	ポリグリセリン	—	—	—	—	—
砥粒:水溶性高分子(1)		1:0.0003	1:0.0003	—	1:0.002	—
砥粒:水溶性高分子(2)		1:0.0003	1:0.0003	—	—	1:0.002
研磨レート		124	109	100	114	109
Ra		103	100	100	82	89
差分GBIR		67	61	100	88	78

[0079] 実施例5～7の研磨用組成物は、実施例2の研磨用組成物をベースに、HECを他の水溶性高分子に置き換えたものである。実施例5～7の研磨用組成物は、具体的には、HECをそれぞれ、PVA、PVP、及びポリグリセリンに置き換えたものである。実施例8～10の研磨用組成物は、実施例2の研磨用組成物をベースに、ポロキサミンを他の水溶性高分子に置き換えたものである。実施例8～10の研磨用組成物は、具体的には、ポロキサミンをそれぞれ、ポロキサマー、ポリオキシエチレンメチルグルコシド、及びポリオキシプロピレンメチルグルコシドに置き換えたものである。

[0080] 比較例11の研磨用組成物は、比較例1と同様、実施例1の研磨用組成物をベースに、水溶性高分子を非添加としたものである。

[0081] 比較例12の研磨用組成物は、比較例4の研磨用組成物をベースに、HECの含有量を変えて、砥粒とHECとの重量%濃度比を1:0.002にしたものである。比較例13の研磨用組成物は、比較例3の研磨用組成物をベースに、ポロキサミンの含有量を変えて、砥粒とポロキサミンとの重量%濃度比を1:0.002にしたものである。

[0082] これらの研磨用組成物を使用して、研磨例1と類似の条件で研磨を行った。そして、研磨例1と同様に、研磨レート、表面粗さRa、差分GBIRを

求めた。結果を前掲の表4及び表5に示す。表4及び表5の研磨レート、表面粗さ $R_a$ 、差分 $GBIR$ の数値は、比較例11（水溶性高分子を含有しない研磨用組成物）による値を100としたときの相対値である。

[0083] 実施例5～10では、研磨レート及び表面粗さ $R_a$ が比較例11と同等か同等以上であり、差分 $GBIR$ が大きく改善していた。特に、実施例5（水溶性高分子がポロキサミンとPVA）、実施例7（水溶性高分子がポロキサミンとポリグリセリン）では、研磨レートも顕著に向上していた。

[0084] 比較例12、13は、差分 $GBIR$ の改善が十分ではなかった。これは、これらの研磨用組成物が水溶性高分子を一種しか含有していなかったためと考えられる。

[0085] 以上の結果から、研磨用組成物に二種以上の水溶性高分子を適量含有させることで、研磨後のウェーハの形状を高い水準で制御できることが確認された。

[0086] 以上、本発明の実施の形態を説明した。上述した実施の形態は本発明を実施するための例示に過ぎない。よって、本発明は上述した実施の形態に限定されることなく、その趣旨を逸脱しない範囲内で上述した実施の形態を適宜変形して実施することが可能である。

## 請求の範囲

[請求項1]

砥粒と、  
 塩基性化合物と、  
 二種以上の水溶性高分子とを含み、  
 前記二種以上の水溶性高分子のそれぞれと前記砥粒との重量%濃度比が、砥粒：水溶性高分子＝1：0.0001～1：0.0010であり、  
 前記二種以上の水溶性高分子のうちの一つが、1分子中のヒドロキシ基又はラクタム構造の数が10未満である水溶性高分子であり、  
 前記二種以上の水溶性高分子のうち他の一つが、1分子中のヒドロキシ基又はラクタム構造の数が10以上である水溶性高分子である、研磨用組成物。

[請求項2]

請求項1に記載の研磨用組成物であって、  
 前記二種以上の水溶性高分子のうちの一つが、下記一般式(1)で示される2つの窒素を有するアルキレンジアミン構造を含み、該アルキレンジアミン構造の2つの窒素に、少なくとも1つのブロック型ポリエーテルが結合されたジアミン化合物であって、該ブロック型ポリエーテルが、オキシエチレン基とオキシプロピレン基とが結合してなるジアミン化合物である、研磨用組成物。

[化1]



(式中、nは1以上の整数を示す。)

[請求項3]

請求項1に記載の研磨用組成物であって、  
 前記二種以上の水溶性高分子のうち他の一つが、ヒドロキシエチルセルロースである、研磨用組成物。

[請求項4] 請求項1に記載の研磨用組成物であって、

前記二種以上の水溶性高分子のうちの一つが、下記一般式(1)で示される2つの窒素を有するアルキレンジアミン構造を含み、該アルキレンジアミン構造の2つの窒素に、少なくとも1つのブロック型ポリエーテルが結合されたジアミン化合物であって、該ブロック型ポリエーテルが、オキシエチレン基とオキシプロピレン基とが結合してなるジアミン化合物であり、

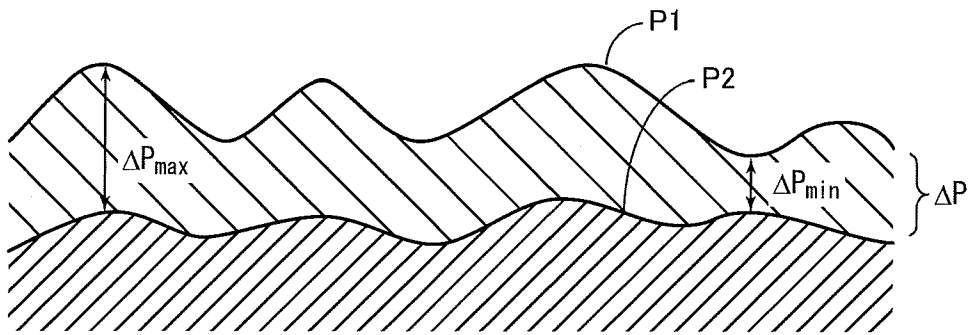
前記二種以上の水溶性高分子のうちの他の一つが、ヒドロキシエチルセルロースである、研磨用組成物。

[化1]

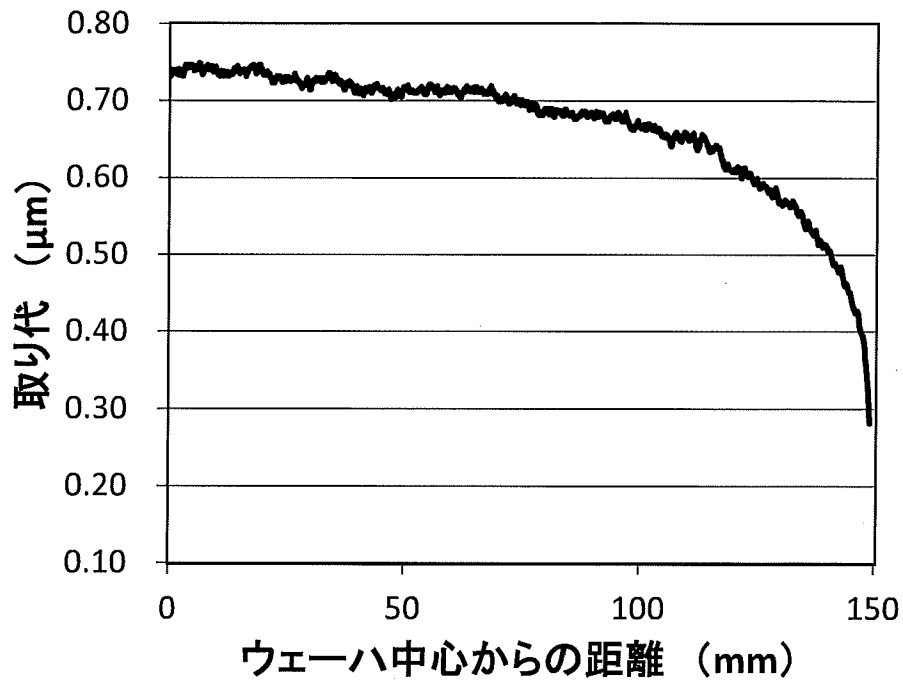


(式中、nは1以上の整数を示す。)

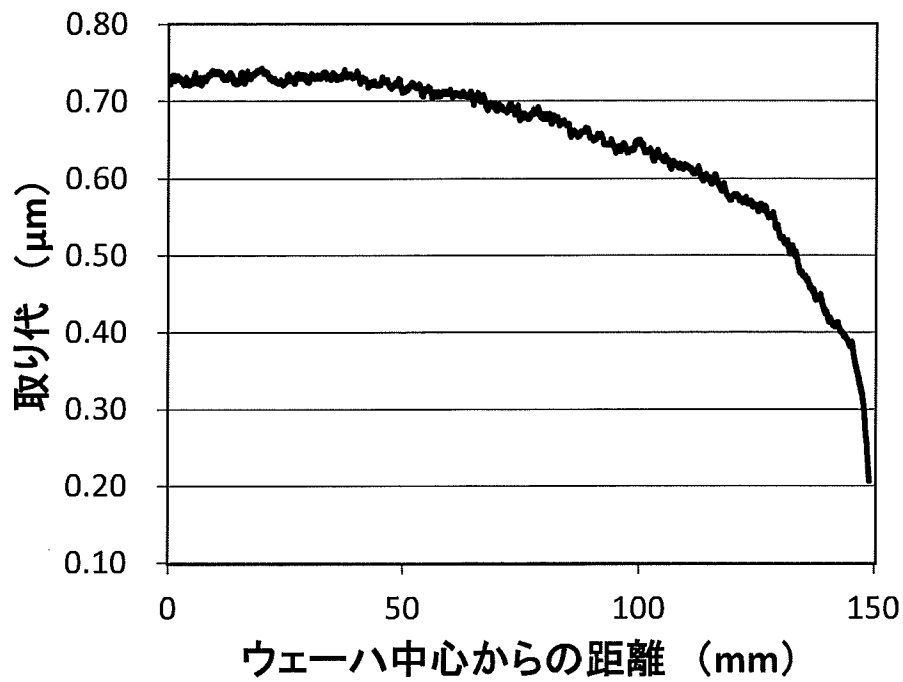
[図1]



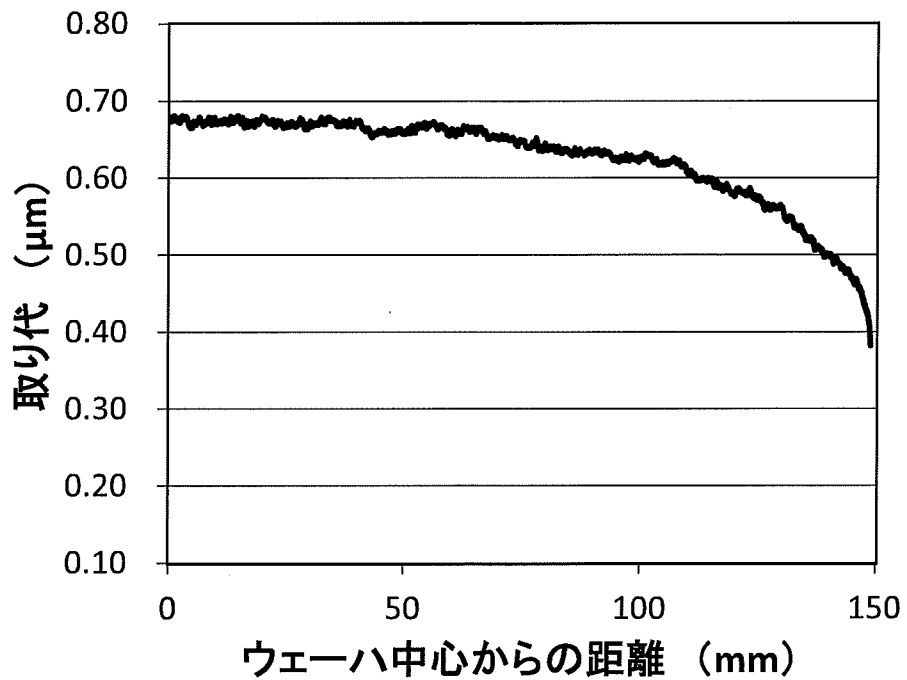
[図2]



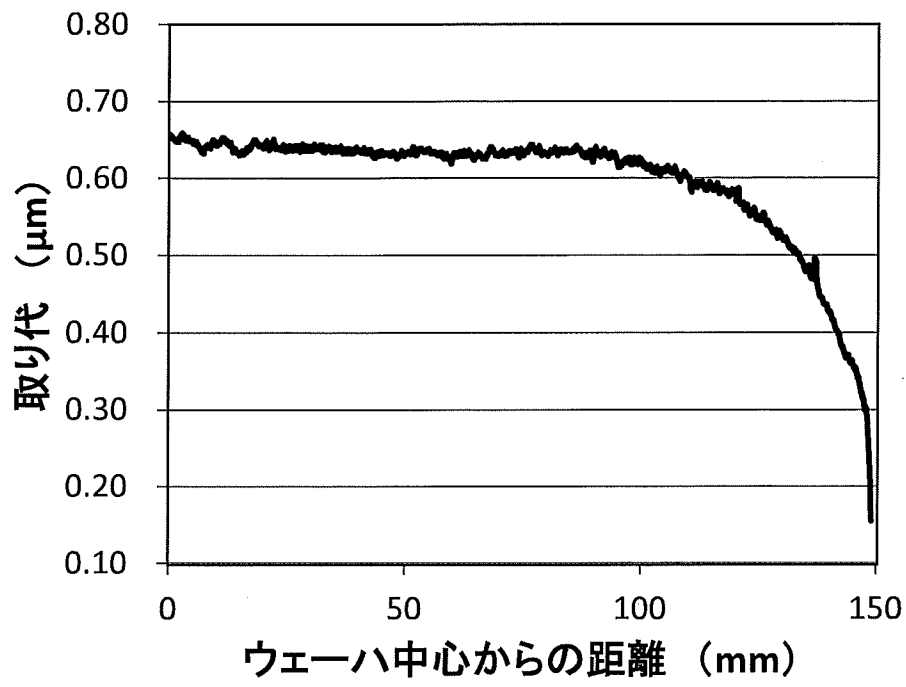
[図3]



[図4]



[図5]



**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No.

PCT/JP2017/047089

**A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER**

Int. Cl. C09K3/14 (2006.01) i, B24B37/00 (2012.01) 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)

Int. Cl. C09K3/14, B24B37/00, H01L21/304

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Published examined utility model applications of Japan 1922-1996  
 Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2018  
 Registered utility model specifications of Japan 1996-2018  
 Published registered utility model applications of Japan 1994-2018

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

CAplus/REGISTRY (STN), JSTplus/JST7580/JSTChina (JDreamIII)

**C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT**

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 2009/041697 A1 (NITTA HAAS INC) 02 April 2009, claims, embodiments, paragraph [0004] & CN 101821835 A & DE 112008002628 T5 & KR 10-2010-0099679 A & SG 185262 A1 & TW 200914596 A & US 2010/0294983 A1, claims, examples, paragraphs [0031], [0041] & WO 2009/041697 A1	1-4

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



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2017/047089

## C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X --- A	JP 2016-056220 A (JAPAN CABOT MICROELECTRONICS CORP) 21 April 2016, claims, embodiments, paragraphs [0038]-[0039], [0045], [0047] & CN 107075309 A & KR 10-2017-0048513 A & TW 201615797 A & WO 2016/035346 A1	1-4
X --- A	JP 2015-205348 A (HITACHI CHEMICAL CO., LTD.) 19 November 2015, claims, embodiments, paragraphs [0063], [0082], [0089], [0100], [0101], [0145] & WO 2014/034379 A1	1-2 --- 3-4
X --- A	JP 2010-153626 A (FUJIFILM CORP.) 08 July 2010, claims, embodiments, paragraphs [0037], [0058], [0064], [0088] & TW 201035299 A & US 2010/0167547 A1, claims, examples, paragraphs [0081], [0118], [0125], [0176]	1, 3 --- 2, 4
X --- A	JP 2008-517791 A (CABOT MICROELECTRONICS CORP) 29 May 2008, claims, embodiments, paragraphs [0028], [0031] & AT 421769 T & CN 101044600 A & CN 102337080 A & EP 1829093 A2 & IL 182536 A & KR 10-2007-0072617 A & MY 143941 A & TW 200621961 A & US 2006/0096496 A1, claims, examples, paragraphs [0028], [0031] & WO 2006/049912 A2	1-2 --- 3-4
X --- A	JP 2016-529356 A (BASF SE) 23 September 2016, claims, embodiments, paragraphs [0100], [0102] & CN 105555889 A & EP 2826827 A1 & KR 10-2016-0034960 A & RU 2016105297 A & SG 11201600360Y A & TW 201516104 A & US 2016/0160083 A1 & WO 2015/008193 A1, claims, examples, p. 25, line 19 to p. 26, line 14	1 --- 2-4

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, 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, B24B37/00, 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 1971-2018年  
 日本国実用新案登録公報 1996-2018年  
 日本国登録実用新案公報 1994-2018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）  
 CAlus/REGISTRY (STN), JSTPlus/JST7580/JSTChina (JDreamIII)

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	WO 2009/041697 A1（ニッタ・ハース株式会社）2009.04.02, 請求の範囲, 実施例, [0004] & CN 101821835 A & DE 112008002628 T5 & KR 10-2010-0099679 A & SG 185262 A1 & TW 200914596 A & US 2010/0294983 A1, Claims, Examples, [0031], [0041] & WO 2009/041697 A1	1-4

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	の日の後に公表された文献
「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	「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
「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	「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
「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）	「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
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献	「&」同一パテントファミリー文献
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願	

国際調査を完了した日 30.01.2018	国際調査報告の発送日 13.02.2018
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁（ISA/J P） 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） 小久保 敦規 電話番号 03-3581-1101 内線 3480

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 2016-056220 A (日本キャボット・マイクロエレクトロニクス株式会社) 2016.04.21, 特許請求の範囲, 実施例, [0038]-[0039], [0045], [0047] & CN 107075309 A & KR 10-2017-0048513 A & TW 201615797 A & WO 2016/035346 A1	1-4
X --- A	JP 2015-205348 A (日立化成株式会社) 2015.11.19, 特許請求の範囲, 実施例, [0063], [0082], [0089], [0100], [0101], [0145] & WO 2014/034379 A1	1-2 --- 3-4
X --- A	JP 2010-153626 A (富士フイルム株式会社) 2010.07.08, 特許請求の範囲, 実施例, [0037], [0058], [0064], [0088] & TW 201035299 A & US 2010/0167547 A1, Claims, Examples, [0081], [0118], [0125], [0176]	1, 3 --- 2, 4
X --- A	JP 2008-517791 A (キャボット マイクロエレクトロニクス コーポ レイション) 2008.05.29, 特許請求の範囲, 実施例, [0028], [0031] & AT 421769 T & CN 101044600 A & CN 102337080 A & EP 1829093 A2 & IL 182536 A & KR 10-2007-0072617 A & MY 143941 A & TW 200621961 A & US 2006/0096496 A1, Claims, Examples, [0028], [0031] & WO 2006/049912 A2	1-2 --- 3-4
X --- A	JP 2016-529356 A (ビーエーエスエフ ソシエタス・ヨーロッパ) 2016.09.23, 特許請求の範囲, 実施例, [0100], [0102] & CN 105555889 A & EP 2826827 A1 & KR 10-2016-0034960 A & RU 2016105297 A & SG 11201600360Y A & TW 201516104 A & US 2016/0160083 A1 & WO 2015/008193 A1, Claims, Examples, 第25頁 第19行-第26頁 第14行	1 --- 2-4