

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第4446552号
(P4446552)

(45) 発行日 平成22年4月7日 (2010.4.7)

(24) 登録日 平成22年1月29日 (2010.1.29)

(51) Int. Cl.

F I

H O 1 L 21/52 (2006.01)

H O 1 L 21/52 E

C O 9 J 11/04 (2006.01)

C O 9 J 11/04

C O 9 J 201/00 (2006.01)

C O 9 J 201/00

請求項の数 5 (全 9 頁)

(21) 出願番号 特願2000-122025 (P2000-122025)
 (22) 出願日 平成12年4月24日 (2000.4.24)
 (65) 公開番号 特開2001-24005 (P2001-24005A)
 (43) 公開日 平成13年1月26日 (2001.1.26)
 審査請求日 平成18年9月1日 (2006.9.1)
 (31) 優先権主張番号 特願平11-125430
 (32) 優先日 平成11年5月6日 (1999.5.6)
 (33) 優先権主張国 日本国 (JP)

(73) 特許権者 597066418
 シーマ電子株式会社
 神奈川県横浜市中区花咲町二丁目8番地
 (73) 特許権者 000003034
 東亜合成株式会社
 東京都港区西新橋1丁目14番1号
 (74) 代理人 100088214
 弁理士 生田 哲郎
 (74) 代理人 100100402
 弁理士 名越 秀夫
 (72) 発明者 越部 茂
 神奈川県横浜市港北区富士塚二丁目28番
 22号

審査官 市川 裕司

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 超高密度半導体用の接着剤

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

3740 cm^{-1} の吸収を測定して算出した表面水酸基量が $0.15 \sim 0.4\text{ mmol/g}$ であって、平均粒径が $0.1\text{ }\mu\text{m}$ 以上 $5\text{ }\mu\text{m}$ 以下の球状シリカの表面をシラン系カップリング剤の少なくとも1種以上で処理を施した反応混合物を5重量%以上70重量%以下の比率で含有する半導体用の接着剤。

【請求項2】

球状シリカの粒径分布が、CV値で60%以下であることを特徴とする請求項1に記載の半導体用の接着剤。

【請求項3】

球状シリカを表面処理するシラン系カップリング剤の使用量が、該シリカの理論被覆量の $1/5$ 以上 $1/1$ 以下であることを特徴とする請求項1から請求項2のいずれか1項に記載の半導体用の接着剤。

【請求項4】

シラン系カップリング剤がベース接着剤を構成する主樹脂と反応可能な官能基を有していることを特徴とする請求項1から請求項3のいずれか1項に記載の半導体用の接着剤。

【請求項5】

ベースとなる接着剤が、シリコーン系接着剤・柔軟エポキシ系接着剤・エラストマー系接着剤から選択される少なくとも1種であることを特徴とする請求項1から請求項4のいずれか1項に記載の半導体用の接着剤。

10

20

【発明の詳細な説明】**【0001】****【発明の属する技術分野】**

本発明は、超高密度半導体用の接着剤に関するものである。ここでいう接着剤とは、半導体装置を組み立てるに際し、半導体チップ、放熱板、回路基板等を取り付けるため異種素材を接着するとともに衝撃緩衝の役目をするものである。

【0002】**【従来の技術】**

情報及び通信分野に於ける技術の急速な進歩に呼応して、電子機器の性能向上、小型化、軽量化及び低コスト化が強く求められている。これらの要望を満たすため、電子機器の心臓部である半導体装置の高密度化が必須のものとなっている。半導体装置の高密度化は、例えば、半導体ベアチップを基板に直接取り付けるフリップチップ・ボンディング加工法、更には、電極を面状に配置したBGA（ボール・グリッド・アレイ）加工法やCSP（チップ・サイズ・パッケージ）加工法等の技術によりその実現が図られている。

10

【0003】

半導体装置の高密度化に当たって、接着剤を使用して半導体チップ、放熱板、回路基板等を取り付ける技術が進歩している。この技術は、異種素材同士を接着するとともに半導体装置の熱応力による衝撃を緩和する役目もするものである。半導体装置を接着剤を用いて組み立てるに際しては、半導体を精密に基板等に接着させる必要がある。このため接着剤には品質の均一性及び安定性が求められる。従来の接着剤は液状物、例えばカップリング剤類を接着成分として用いているため、部分的に組成変動を生じ高精度接着用途には不向きであった。接着力がバラツク、不均一にしみ出すといった問題を生じていた。また、半導体装置の組立に当たっては、異種素材を接着しなければならず、従来の接着剤では接着力が不足するという問題がある。

20

【0004】

半導体装置には組立時及び使用時に熱がかかり、これが半導体に熱応力を生じさせ、この応力を緩和しなければならないという問題がある。熱がかかった場合、半導体チップ自身の熱膨張は小さく、接着剤の熱膨張が大きいので、接着剤は膨張しようとし、半導体がその膨張を抑えようとするので応力が発生し、それが半導体装置の故障原因になり、最悪の場合半導体装置自身の破壊の原因にもなる。

30

【0005】

従来の接着剤は、熱膨張を小さくするために充填剤としてシリカが使用されるが、多量に添加すると柔軟性や強度の低下を招く。また、粒径の大きな異方性充填剤は、局部応力を発生するという問題がある。さらに、接着補強剤として超微粒子異方性シリカを用いることも知られているが、添加により粘度が上昇し流動性を失って加工性が悪くなるという問題がある。このため、液状の接着成分を添加する方法が採用されているが、しみ出しや接着力の不均一性という問題を抱えている。

【0006】**【発明が解決しようとする課題】**

本発明は、高密度化する半導体装置を、低コストで組立可能とする半導体用接着剤を提供するものである。この接着剤は、寸法精度、保存性及び接着力に優れ、かつ、半導体装置の組立時及び使用時にかかる熱によって半導体装置に生じる熱応力を緩和することのできるものである。即ち、水酸基を有する球状シリカの表面をカップリング剤で処理した反応混合物を、固形接着成分として使用することにより柔軟性・均一性・安定性及び加工性に優れた高強度の接着剤を提供しようとするものである。

40

【0007】**【課題を解決するための手段】**

請求項1の発明は、水酸基を有する平均粒径が0.1～5μmの球状シリカの表面をシラン系カップリング剤の少なくとも1種以上で処理を施した反応混合物（カップリング剤処理高活性球状シリカと称する）を5～70重量%含有する半導体用の接着剤である。請求

50

項 2 は、該シリカの粒径分布が C V 値で 60 % 以下である請求項 1 の半導体用接着剤である。請求項 3 は、該シリカの水酸基量が 0.01 ~ 1.0 mmol / g である請求項 1 又は 2 の半導体用の接着剤である。

【0008】

請求項 4 の発明は、球状シリカを表面処理するシラン系カップリング剤の使用量が、該シリカの理論被覆量の 1 / 5 ~ 1 / 1 である請求項 1 から 3 のいずれかの半導体用接着剤である。請求項 5 は、シラン系カップリング剤がベース接着剤の主樹脂と反応可能な官能基を有している請求項 1 から 4 のいずれかの半導体用接着剤である。

【0009】

請求項 6 の発明は、ベースとなる接着剤が、シリコン系接着剤・柔軟エポキシ系接着剤・エラストマー系接着剤から選択される少なくとも 1 種である請求項 1 から 5 のいずれかの半導体用接着剤である。

【0010】

本発明は、カップリング剤処理高活性球状シリカを含有する柔軟で強靱な半導体用接着剤を提供するものである。最適な粒径を有するカップリング剤処理高活性球状シリカを固形接着成分として適量含有する接着剤は、柔軟性・保存性・加工性・接着性に優れたものである。そして、本発明の接着剤を用いて組み立てた半導体装置は、熱応力の緩和に優れ、高密度化が可能で、信頼性が高く製造コストも低いものである。

【0011】

本発明は、カップリング剤処理高活性球状シリカを使用する。従来の球状シリカは水酸基をほとんど有しないためカップリング剤と反応できず、球状シリカとベース樹脂の界面で剥離を生じ強度や耐湿性の低下が大きな問題となる。シリカの形状としては、応力の均一性を得るため等方性即ち球状が必要である。カップリング剤処理をしない場合又はカップリング剤を接着剤製造時に添加する場合には、接着剤の吸湿や粘度上昇等といった問題を生じる。カップリング剤処理高活性球状シリカはベース樹脂と化学的結合を形成し強度や信頼性面で優れた効果を発揮する。又、カップリング剤処理により粘度上昇を抑えることができる。更に、従来の接着剤で発生していた樹脂の滲み出しといった作業性問題も解決できた。

【0012】

本発明で使用する水酸基を有する球状シリカの平均粒径は 0.1 ~ 5 μm であり、粒径が小さすぎると粘度上昇、大きすぎると局部応力といった問題を生ずる。経験則では、粒径 0.1 μm 未満では粘度上昇の問題より微量添加使用とされている。又、平均粒径が小さくても超微粒子や粗粒子を含んでいると、同様の問題を生ずる。よって、該シリカの C V 値は 60 % 以下が好ましい。ここで、C V 値というのは、下記式から求められるものである。

$$C V 値(\%) = (D1 - D2) \div 2 D_p \times 100$$

上式中 D2 は累計 16 重量%のときの粒径、D1 は累計 84 重量%のときの粒径、D p は平均粒径、即ち、累計 50 重量%のときの粒径を表す。

【0013】

カップリング剤処理高活性球状シリカの使用量としては、5 ~ 70 重量%が好ましい。少なすぎても多すぎても所期の効果が得られない。本発明以外のシリカを併用しても良いが、多量に用いると従来の接着剤同様の悪影響を及ぼす恐れがある。接着剤のチキソ性制御のためには、疎水性ヒュームドシリカを微量添加することが好ましい。

【0014】

カップリング剤処理高活性球状シリカを多量に使用する場合には、適切な粒径を有する複数種を混合することが好ましい。接着剤に多量の無機粒子を添加した場合、接着剤の流動性が低下し接着加工性が極端に悪くなる。粒径の異なるものを混合することにより流動性が改善できることが知られている。

【0015】

本発明に使用する球状シリカは、その表面に有する水酸基の量が該シリカに対し 0.01

10

20

30

40

50

～ 1 . 0 m m o l / g であることが好ましい。水酸基の量が多過ぎると一部の水酸基が未処理となるため、空気中の水分を吸着し半導体装置の信頼性を低下させるという問題を生じる。水酸基量の下限値は、水酸基の測定精度及び従来の球状シリカの測定値より定めた。水酸基が少ない場合には含有量が極めて小さくなり測定精度の問題が大きくなるためである。ちなみに、シリカ粒子に水酸基が 1 0 0 0 個存在する場合、平均粒径が 2 μ m では水酸基量は 1 . 7 \times 1 0 E - 6 m m o l / g になる。又、2 0 0 0 程度で熔射した理論上は水酸基をほとんど有しないとされている従来の球状シリカの水酸基量を測定した結果は、現在の測定精度である 0 . 0 1 m m o l / g より小さい数値を示した。

【 0 0 1 6 】

水酸基を有する球状シリカを表面処理するシラン系カップリング剤の使用量は、該シリカの理論被覆量の 1 / 5 ～ 1 / 1 であることが好ましい。少なすぎたり多すぎたりすると処理が不十分又は過剰となり、効果が得られなかったり悪影響を与えるためである。本発明でいう理論被覆量というのは、該シリカを完全球体と仮定し下記式より求めるものである。

理論被覆量 (重量 %) = 2 7 0 / (D \times C A)

上式中、D は球状シリカの平均粒径、C A はカップリング剤の最少被覆面積を表す。従来の B E T 法による比表面積に基づく過剰処理となり作業性等で問題を起こす。

【 0 0 1 7 】

シリカとカップリング剤の処理方法としては、公知の方法を利用することができる。カップリング剤を加水分解する、縮合触媒を加える、さらに乾燥させるといった方法が提案されている。従来の球状シリカでは水酸基がないため、どの方法を採用しても本来のカップリング効果は得られない。又、水酸基を有する球状シリカを使用しても、カップリング剤を製造時に添加する方法では、樹脂とシリカの結合という本来の役目を果たすことは難しい。カップリング剤を架橋剤や硬化剤としても用いる場合には、該目的の量を製造時に添加すれば良い。

【 0 0 1 8 】

使用するシラン系カップリング剤はベース接着剤を構成する主樹脂と反応可能な官能基を有していることが好ましい。主樹脂がエポキシ樹脂の場合にはエポキシ基、不飽和オレフィン系樹脂の場合にはビニル基といった官能基を持つことが好ましい。

【 0 0 1 9 】

本発明に使用する接着剤は通常の接着剤を使用することができるが、応力緩和に有効という観点から柔軟性接着剤を使用するのが好ましい。具体的には、シリコン系接着剤・エポキシ系柔軟接着剤・エラストマー系接着剤から選択される少なくとも 1 種の接着剤が好ましい。そして、各柔軟性接着剤は、エポキシ基・カルビノール基・水酸基・アミノ基・アルコキシ基・ビニル基等の接着性官能基のうち少なくとも 1 種を骨格に持つことが好ましい。

【 0 0 2 0 】

シリコン系接着剤としては、ビニル基含有型ポリシロキサンを好ましく使用することができる。該ポリシロキサンは各種添加剤を加えることができ、硬化剤や触媒類の存在下硬化しゴム弾性を有するシリコンゴムとなる。このゴム弾性により半導体装置の組立時又は使用時に発生する熱応力を緩和することができる。硬化剤や触媒類はシリコンメーカーのカatalog等に記載の通りである。

【 0 0 2 1 】

エポキシ樹脂は一般的に硬化後は柔軟性を持たない硬質なものが多い。本発明では柔軟性を有するエポキシ樹脂及び硬化剤を使用するのが好ましく、具体的には炭化水素変性・エラストマー変性・ゴム変性・シリコン変性等の変性樹脂を用いる。これらの樹脂に、各種添加剤を加えた硬化物は弾性を持ち応力を緩和することができる。

【 0 0 2 2 】

次に、エラストマー系接着剤としては、スチレン系・オレフィン系・ポリエステル系・ポリアミド系・ウレタン系等のものである。ビニル基・エポキシ基・水酸基・アルコキシ基

10

20

30

40

50

・アクリル基・イソシアネート基等の反応性官能基を有するものが使用される。

【0023】

本発明の接着剤には悪影響を与えない範囲で他の接着成分を添加しても良い。エポキシ基・水酸基・アミノ基・アルコキシ基等の官能基を有する化合物が使用できる。

【0024】

従来の接着剤は、液状接着成分や超微粒シリカを多量に用いるため、接着精度が悪い、加工性が悪い、接着力がバラツク、不均一にしみ出す、歩留まりが悪いといった問題を有している。

【0025】

本発明の接着剤は、ペースト状又は固形状で使用でき、テープ状等に加工することもできる。テープ状にした場合も、安定した高い接着力を保持することができる。

10

【0026】

本発明の接着剤は、接着すべき素材間に該接着剤をつけて硬化させるものである。即ち、接着剤本体が未硬化の状態で、半導体チップ等を貼付硬化させ半導体装置を組立てるものである。その際、カップリング剤処理高活性球状シリカを固形接着成分として用いることにより、接着効果を一層大きく安定なものにすることができる。

【0027】

本発明者は、既に表面に水酸基を有する球状シリカの効果を見だし、複数の発明を出願している（特願平10-330463、特願平11-33722、特願平11-33723）。本発明は、さらに本来の目的通りシリカ表面をカップリング処理することにより、
20

20

【0028】

図1は、BGAに本発明の接着剤を適用したものである。半導体チップ25は、接着剤26を介して基板28に取り付けられている。29は半田ボールである。半導体チップ25が接着剤26を介して基板28に取り付けられており、これら全体がフレーム30で囲まれている。外部へは配線27により接続されている。接着剤26は、半導体チップ25を基板28に接着させるとともに、半導体装置に加わる熱応力を緩和する機能をもつ。

【0029】

図2は、ワイヤーボンディング方式への適用例である。半導体チップ47は、接着剤43を介して基板44に取り付けられている。42は半田ボールであり、46は封止材料である。外部へは配線45で接続されている。接着剤43は、半導体チップ47を基板44に接着させるとともに、半導体装置にかかる熱応力を緩和する機能をもつ。

30

【0030】

以下、本発明を検討例にて具体的に説明する。ここで、部は全て重量部である。

【実施例1】

カップリング剤処理高活性球状シリカA40部、シクロペンタジエン変性エポキシ樹脂（XD-1000、日本化薬）40部、キシレン変性フェノール樹脂（XL-225、三井化学）20部及び触媒（TPP-K、北興化学工業）1部を混合し加熱型3本ロールにて60で10分間混練し接着剤を製造した。この接着剤を模擬BGAにおいて、フレキシブル回路基板（FPCと称する）上に175μm厚みでスクリーン印刷し、半導体チップ
40

40

【0031】

カップリング剤処理高活性球状シリカAは、特開平10-287415に準じて製造した高活性球状シリカ100部（平均粒径2μm、CV値56%、水酸基0.2mmo1/g）に加水分解KBM-403（信越化学工業）0.4部を噴霧した後3日間室温静置したものである。カップリング剤の添加量は理論被覆量の80%である。

【0032】

50

試験方法は、以下の通りである。

吸湿半田テスト：温度 125 ・湿度 100 % の条件下にて 24 時間放置した後、赤外線炉で 260 ・10 秒で 3 回加熱する。

耐湿性テスト：半田吸湿テストを施したものを、温度 125 ・湿度 100 % で 1000 時間放置する。

水酸基量の測定：検体にシリカゲルを内部標準物質として添加し、FT-IR 拡散反射法により 3740 cm⁻¹ の吸収を測定し水酸基量を算出する。本方法の測定精度は 0.01 mmol / g である。尚、検体とトリメチルシランを反応させ、シラン消費量より水酸基量を算出する方法では測定精度は 0.1 mmol / g であった。今後、高精度の測定方法を検討することにより、水酸基量の最適範囲はより明確になると考えられる。

10

【0033】

【実施例 2】

ビニル基含有型ポリシロキサン (TSE260-3U、東芝シリコン) 74 部、テルペン系重合体 (YS-125、ヤスハラケミカル) 5 部、カップリング剤処理高活性球状シリカ B 20 部、及び超微粒シリカ (MT-10、トクヤマ) 1 部、触媒 (TC-8、東芝シリコン) 0.5 部を使用し実施例 1 同様に接着剤を製造した。FPC 上へのスクリーン印刷では優れた加工性を示し、吸湿半田テスト及び耐湿性テストでも不良は発生しなかった。

【0034】

カップリング剤処理高活性球状シリカ B は、珪酸ナトリウムを原料とし乳化濾過乾燥さらに 800 焼成にて製造された高活性球状シリカ 100 部 (平均粒径 4 μm、CV 値 27 %、水酸基量 0.4 mmol / g) に、KBM-503 (信越化学工業) 0.2 部、水 0.05 部及び微量酢酸の混合物を噴霧し、更に 120 で 30 分加熱したものである。又、超微粒シリカは水酸基を有するシリカ (平均粒径 10 nm) をクロルシラン類にて表面処理したものである。

20

【0035】

【実施例 3】

カップリング剤処理高活性球状シリカ A 40 部カップリング剤処理高活性球状シリカ C 20 部、熱可塑性エラストマー (D-1117、シェルジャパン) 35 部及び液状合成ゴム (B-1000、日本曹達) 5 部、ベンゾイルパーオキサイド 0.5 部を 2 本ロールにて 5 分間混練し固形接着剤を得た。次に FPC 上に 175 μm の接着剤層を圧縮成形加工し、吸湿半田テスト及び耐湿テストを実施した。、模擬 BGA のテストでの不良発生はなかった。

30

【0036】

カップリング剤処理高活性球状シリカ C は市販品 (SO-E2、龍森) をフツ酸で洗い表面に水酸基を生成させたシリカ (平均粒径 0.4 μm、CV 値 20 %、水酸基量 0.15 mmol / g) をカップリング剤処理高活性球状シリカ A と同様に処理したものである (カップリング剤量 2 phf)。

【0037】

【比較例 1】

実施例 1 でカップリング剤処理高活性球状シリカ A の代わりに、熔射法で製造された水酸基をほとんど持たない球状シリカ TSS-4 (龍森)、平均粒径 4 μm、CV 値 51 % を同様にカップリング処理し用いた。得られた接着剤はスクリーン印刷時に樹脂分が滲み出し 15 % が不良となった。良品を実施例 1 同様に吸湿半田テストしたところ 35 % にクラックが発生した。不良が多いので耐湿性テストは中止した。該球状シリカが表面に水酸基をほとんど持たないため、カップリングできずベース樹脂との界面で剥離現象を起こしたものである。尚、本シリカの水酸基量は測定限界 (0.01 mmol / g) 以下であった。

40

【0038】

【比較例 2】

50

実施例 1 でカップリング剤処理を施さない同じ球状シリカ用い接着剤を製造した。この接着剤の粘度は実施例の 1.5 倍であり、印刷時に充填不良 8 % を発生した。良品にて吸湿半田テスト及び耐湿性テストを行ったところ 10 % の不良が発生した。シリカと樹脂の界面が剥離したためと考えられる。

【0039】

【比較例 3】

実施例 3 にて、カップリング剤処理高活性球状シリカ A を 140 部として接着剤を製造した。この接着剤はシリカ含有量が多すぎ流動性で劣り、圧縮成形時に 10 % の未充填不良が発生した。良品を吸湿半田テストしたところ 20 % でクラック不良が発生した。柔軟性に劣り応力緩和効果が得られなかった。

10

【0040】

【比較例 4】

実施例 2 にて、カップリング剤処理高活性球状シリカ B の代わりに、熔射製法不活性球状シリカ FB - 6 S (電気化学工業)、平均粒径 6 μ m、CV 値 83 %、を用いて接着剤を製造した。この接着剤は印刷時に滲み出し及び厚み精度で各 10 % 以上の不良が発生した。粒径の大きなシリカは加工性に大きな悪影響を及ぼす。尚、本シリカの水酸基量は 0.01 mmol / g 以下であった。

【0041】

【比較例 5】

実施例 3 にて、水酸基を有する球状シリカとして、焼成温度を 400 に低下させたもの (水酸基 1.2 mmol / g) を用い、同様にカップリング処理及び加工を行い接着剤の製造した。この接着剤は成形時に 15 % のボイド不良が発生した。良品で吸湿率を測定したところ 0.4 重量 % と実施例 3 の 0.2 重量 % の 2 倍であった。水酸基が多く水分を吸収するため耐湿性の低下が危惧される。

20

【0042】

【比較例 6】

実施例 1 に於いて、カップリング剤と高活性球状シリカを他の成分と同時に混合し接着剤を製造した。この接着剤は印刷時に不均一な滲み出しで 5 % の不良が発生した。又、接着剤の粘度は実施例 1 より 15 % 高く、5 % の充填不良が発生した。即ち、予めカップリング処理を施さないと、水酸基及びカップリング剤はそのまま残り、増粘や分離の現象を起こす。

30

【0043】

【比較例 7】

比較例 6 にて、加水分解 KBM - 403 を 0.6 phf にしたカップリング剤処理高活性球状シリカを用い接着剤を製造した。この接着剤は印刷時に滲み出し不良 5 % を発生した。水酸基と反応できなかった過剰なカップリング剤が流れ出したものである。

【0044】

【発明の効果】

本発明は、超高密度半導体装置を低コストで加工するための接着剤を提供するものである。即ち、半導体チップ、放熱板等と回路基板等を接着させるための加工性に優れた接着剤である。この接着剤を用いることにより、半導体装置の組立時及び使用時に生ずる熱応力を緩和することができ、信頼性の非常に高い半導体装置を製造することができる。

40

【0045】

また、本接着剤は、保存性、安定性、作業性及び接着性に優れたものとなっている。このため、できあがった半導体装置は強靱堅固なものとなる。

【図面の簡単な説明】

【図 1】 本発明の実施形態の一例を示す図である。

【図 2】 本発明をワイヤーボンディングに適用した例である。

【符号の説明】

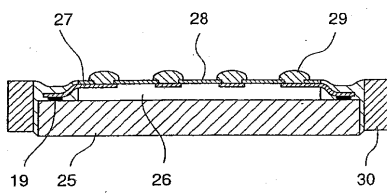
25、47

半導体チップ

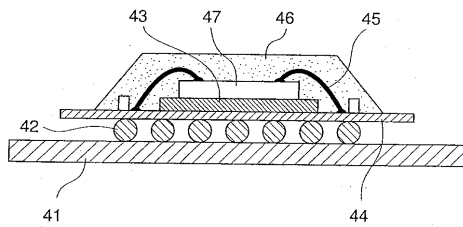
50

28、41、44	基板
29、42	半田ボール
26、43	接着剤
46	封止樹脂
27、45	配線
30	フレーム

【図1】



【図2】



フロントページの続き

(56)参考文献 特開平 1 0 - 1 1 0 1 4 7 (J P , A)
特開平 1 1 - 0 4 3 3 2 0 (J P , A)
特開平 1 0 - 2 8 7 4 1 5 (J P , A)
特開平 1 1 - 0 9 2 7 1 9 (J P , A)
特開平 0 9 - 1 9 9 5 1 8 (J P , A)
特開平 0 6 - 0 2 5 5 1 2 (J P , A)
特開 2 0 0 0 - 2 9 7 2 6 3 (J P , A)

(58)調査した分野(Int.Cl. , D B 名)

H01L 21/52
C09J 11/04
C09J 201/00