

明 細 書

発明の名称：

パターン反転膜形成用組成物及び反転パターン形成方法

技術分野

[0001] 本発明は、パターン反転膜形成用組成物並びに該組成物を用いた反転パターンの形成方法に関する。更に詳しくは、本発明は、有機溶剤で除去可能な反転パターンを形成可能なパターン反転膜形成用組成物を提供する。

背景技術

[0002] 半導体素子製造プロセスにおいて、フォトレジストパターンは、フォトレジスト塗布、プリベーク、露光、ポストベーク、そしてレジスト現像工程を経て形成されている。

近年、半導体素子の高集積化に伴い、上述のフォトレジストパターンの微細化がますます求められており、高精度な寸法制御を図ったパターン形成方法として、反転マスクパターンの形成方法やその際に用いるパターン反転用の樹脂組成物が提案されている（特許文献１、特許文献２）。

先行技術文献

特許文献

[0003] 特許文献１：特開平５－２６７２５３号公報

特許文献２：特開２００２－１１０５１０号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0004] フォトレジストパターンの形成にあたってはパターン不良の発生は多少なりとも避けられず、この場合、アッシング（酸素プラズマ）処理や薬液（レジスト剥離液）処理などによって、不良パターンが形成された基板を再生、再利用すること（以下「リワーク」と称する）がなされている。

上述の反転マスクパターンにおいてもリワーク性（リワーク可能又は容易な性質をいう）が求められているが、これまで提案されている反転パターン

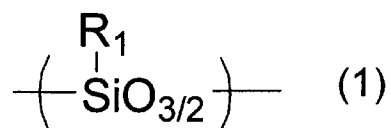
材料にはシリコン原子が含まれているため、アッシング処理を行おうとしても酸化ケイ素に変質硬化するため除去が不可能となり、また、該パターンはベーク処理によって架橋反応が進行していることから、従来のレジスト剥離剤を用いた薬液処理による除去も困難となっていた。

本発明は、レジストパターンの剥離に通常使用される有機溶剤にてリワーク可能なシリコン含有パターン反転膜形成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

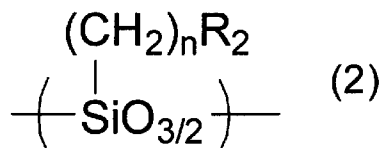
[0005] 本発明者らは、上記目的を達成するために鋭意検討を重ねた結果、特定の構造単位を有するポリシロキサンと特定の添加剤とを含む組成物を構成することにより、特殊な薬剤を用いることなく、有機溶剤を用いた薬液処理によって反転パターンを除去できる、パターン反転膜形成用組成物が得られることを見出し、本発明を完成した。

[0006] すなわち、本発明は、第1観点として、ポリシロキサン、添加剤及び有機溶媒を含むパターン反転膜形成用組成物であって、前記ポリシロキサンは、下記式(1)で表される構造単位及び式(2)で表される構造単位を有し、
[化1]



(式中、 R_1 は炭素原子数1乃至8のアルキル基を表す。)

[化2]



(式中、 R_2 はアクリロイルオキシ基又はメタアクリロイルオキシ基を表し、 n は2乃至4の整数を表す。)並びに、

前記添加剤がカルボキシル基及び／又はヒドロキシ基を少なくとも2つ有する有機酸であることを特徴とする組成物に関する。

- [0007] 第2観点として、前記添加剤がマレイン酸、クエン酸、サリチル酸、3-ヒドロキシ安息香酸、4-ヒドロキシ安息香酸、2,6-ジヒドロキシ安息香酸、3,5-ジヒドロキシ安息香酸、ガリック酸、フタル酸、ピロメリット酸及びアスコルビン酸からなる群から選択される有機酸である、第1観点到記載のパターン反転膜形成用組成物に関する。
- [0008] 第3観点として、前記有機溶媒が、炭素原子数2乃至10のアルコール類から選択される、第1観点又は第2観点到記載のパターン反転膜形成用組成物に関する。
- [0009] 第4観点として、前記ポリシロキサンが、前記式(1)で表される構造単位と前記式(2)で表される構造単位をモル比で50:50乃至99:1で含むことを特徴とする、第1観点乃至第3観点的うちいずれかに記載のパターン反転膜形成用組成物に関する。
- [0010] 第5観点として、被加工基板上にレジストパターンを形成する工程、前記レジストパターンのパターンを被覆するように、第1観点乃至第4観点的うちいずれかに記載のパターン反転膜形成用組成物を塗布し、80℃ないし180℃の温度で加熱してパターン反転膜を形成する工程、前記パターン反転膜をエッチバックして前記レジストパターンの表面を露出させる工程、及び前記レジストパターンを除去し、反転パターンを形成する工程とを含む反転パターン形成方法に関する。
- [0011] 第6観点として、第1観点乃至第4観点的うちいずれかに記載のパターン反転膜形成用組成物により、被加工基板上のレジストパターンを被覆し、加熱することで得られたパターン反転膜を、有機溶剤によって前記レジストパターンと共に剥離するパターン反転膜の除去方法に関する。
- [0012] 第7観点として、前記有機溶剤は、プロピレングリコールモノメチルエーテル、プロピレングリコールモノメチルエーテルアセテート、乳酸エチル及びシクロヘキサノンからなる群から選択される1種又は2種以上からなる、第6観点到記載のパターン反転膜の除去方法に関する。

発明の効果

[0013] 本発明のパターン反転膜形成用組成物は、有機溶剤によって除去可能なパターン反転膜を形成できる。特に本発明のパターン反転膜形成用組成物は、プロピレングリコールモノメチルエーテルとプロピレングリコールモノメチルエーテルアセートの混合溶剤といった汎用の有機溶剤を用いて除去可能なパターン反転膜を形成することができる。

このため、本発明のパターン反転膜形成用組成物より得られたパターン反転膜は、膜形成時の不良、及び該パターン反転膜から形成された反転パターンに不具合が生じた場合には基板から容易に除去可能であり、基板の再生・再利用が可能であり、半導体製造工程の低コスト化に寄与することが可能である。しかも勿論、本発明のパターン反転膜形成用組成物は、パターン反転膜としての要求性能を満たす膜を形成することができるものである。

[0014] したがって本発明のパターン反転膜形成用組成物は、今後更に微細化が進行するとみられるＬＳＩの製造において、極めて好適に使用することができる。

図面の簡単な説明

[0015] [図1]図１は、有機下層膜を形成したシリコン基板上のレジストパターンの断面ＳＥＭ像を示す図である。

[図2]図２は、実施例１で得たパターン反転膜形成用組成物を用いて得られたパターン反転膜の断面ＳＥＭ像を示す図である。

[図3]図３は、レジストパターン上部を露呈させた状態としたレジストパターン及びパターン反転膜の断面ＳＥＭ像を示す図である。

[図4]図４は、実施例１のパターン反転膜形成用組成物を用いて得られた反転パターンの断面ＳＥＭ像を示す図である。

[図5]図５は、得られた反転パターンをエッチングマスクとして、有機下層膜をパターンニングした結果の断面ＳＥＭ像を示す図である。

[図6]図６は、有機下層膜を形成したシリコン基板上のレジストパターンの断面ＳＥＭ像を示す図である。

[図7]図７は、実施例１８で得たパターン反転膜形成用組成物を用いてパター

ン反転膜を形成した後、レジストパターン上部を露呈させた状態としたレジストパターン及びパターン反転膜の断面SEM像を示す図である。

[図8]図8は、レジストパターンを除去して得られた反転パターンをエッチングマスクとして、有機下層膜をパターンニングした結果の断面SEM像を示す図である。

発明を実施するための形態

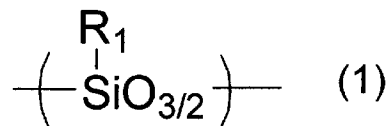
[0016] 以下、本発明の実施の形態について詳細に説明する。

[パターン反転膜形成用組成物]

<ポリシロキサン>

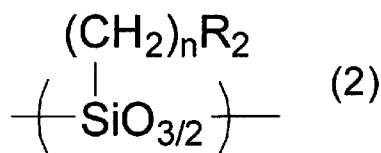
本発明のパターン反転膜形成用組成物に含まれるポリシロキサンは、下記式(1)で表される構造単位と、下記式(2)で表される構造単位を有するポリシロキサンである。

[化3]



(式中、 R_1 は炭素原子数1乃至8のアルキル基を表す。)

[化4]



(式中、 R_2 はアクリロイルオキシ基又はメタアクリロイルオキシ基を表し、 n は2乃至4の整数を表す。)

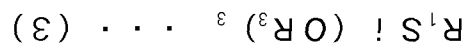
[0017] 上記式(1)中、 R_1 はメチル基、エチル基、 n -プロピル基、イソプロピル基、 n -ブチル基、イソブチル基、 t ert-ブチル基、ペンチル基、ヘプチル基、ヘキシル基、オクチル基、シクロヘキシル基等が挙げられ、好ましくはメチル基又はエチル基である。

[0018] 前記ポリシロキサンにおいて、上記式(1)で表される構造単位と、上記式(2)で表される構造単位の割合は、モル比で50:50乃至99:1で

あることが好ましく、特に70:30乃至95:5であることが好ましい。

また上記式(1)で表される構造単位と、上記式(2)で表される構造単位は、ランダム共重合体、ブロック共重合体、交互共重合体の何れの構造を形成してもよい。

[0019] 本発明のパターン反転膜形成用組成物に含まれるポリシロキサンは、例えば下記式(3)で表されるシラン化合物と、式(4)で表されるシラン化合物とを共加水分解縮合反応させることによって得られる。



(式中、 R_1 は式(1)における定義と同義であり、 R_3 はそれぞれ独立して炭素原子数1乃至4のアルキル基を表す。)



(式中、 R_2 及び n は式(2)における定義と同義であり、 R_4 はそれぞれ独立して炭素原子数1乃至4のアルキル基を表す。)

[0020] 上記式(3)及び式(4)で表されるシラン化合物における炭素原子数1乃至4のアルキル基としては、例えばメチル基、エチル基、 n -プロピル基、イソプロピル基、 n -ブチル基、イソブチル基、 t -ブチル基が挙げられ、好ましくはメチル基又はエチル基である。

なお、式(3)又は式(4)中、各 R_3 又は各 R_4 は、全て同じであっても一部が異なっても良い。

[0021] 上記式(3)で表されるシラン化合物の具体例としては、メチルトリメトキシラン、メチルトリエトキシラン、メチルトリ n -プロポキシラン、メチルトリイソプロポキシラン、メチルトリ n -ブトキシラン、メチルトリイソブトキシラン、エチルトリ n -ブトキシラン、エチルトリイソブトキシラン、エチルトリ n -ペンタオキシラン等のエチルトリアルコキシシ

ランが挙げられる。

これらの中でも、メチルトリメトキシシラン又はメチルトリエトキシシランが好ましい。

これら式（３）で表されるシラン化合物は１種を単独で使用してもよいし、２種以上を組み合わせ用いてもよい。

[0022] また上記式（４）で表されるシラン化合物の具体例としては、３－アクリロイルオキシプロピルトリメトキシシラン、３－アクリロイルオキシプロピルトリエトキシシラン、３－メタクリロイルオキシプロピルトリメトキシシラン、３－メタクリロイルオキシプロピルトリエトキシシラン、２－アクリロイルオキシエチルトリメトキシシラン、２－アクリロイルオキシエチルトリエトキシシラン、２－メタクリロイルオキシエチルトリメトキシシラン、２－メタクリロイルオキシエチルトリエトキシシランが挙げられる。

これらの中でも、３－メタクリロイルオキシプロピルトリメトキシシラン、３－メタクリロイルオキシプロピルトリエトキシシランが好ましい。

これら式（４）で表される化合物は１種を単独で使用してもよいし、２種以上を組み合わせ用いてもよい。

[0023] 上記式（３）で表されるシラン化合物と上記式（４）で表されるシラン化合物の共加水分解縮合反応は、典型的には有機塩基又は無機塩基等の塩基性触媒の存在下で実施される。好ましい触媒の例としては、例えば水酸化カリウム、水酸化セシウム、水酸化アンモニウム、水酸化テトラメチルアンモニウム、水酸化テトラブチルアンモニウム、及びホスファゼン塩基（例えば *Phosphazene Base P₄-t-Bu* 溶液）を挙げることができる。

使用する塩基性触媒の使用量は、通常、式（３）で表されるシラン化合物と式（４）で表されるシラン化合物の全量１００質量部に対して、０．００１質量部ないし１質量部である。

上記共加水分解縮合反応は、例えば、６０℃ないし８０℃の温度条件にて実施される。

[0024] 本発明のパターン反転膜形成用組成物におけるポリシロキサンの濃度は適

宜調整することができるが、例えば、1質量%ないし30質量%、特に5質量%ないし20質量%とすることができる。

[0025] <添加剤>

本発明のパターン反転膜形成用組成物に含まれる添加剤は、カルボキシル基及び／又はヒドロキシ基を少なくとも2つ有する有機酸である。

上記添加剤として好ましくは、マレイン酸、クエン酸、サリチル酸、3-ヒドロキシ安息香酸、4-ヒドロキシ安息香酸、2,6-ジヒドロキシ安息香酸、3,5-ジヒドロキシ安息香酸、ガリック酸、フタル酸、ピロメリット酸及びアスコルビン酸からなる群から選択される有機酸である。

[0026] 本発明のパターン反転膜形成用組成物における上記添加剤の使用量は、前記ポリシロキサン（固形分）の質量に対して例えば0.01質量%乃至10質量%であり、好ましくは、0.1質量%乃至5質量%である。

[0027] <有機溶媒>

本発明のパターン反転膜形成用組成物に含まれる前記有機溶媒は、上記添加剤である有機酸を溶解可能なものであり、好ましくは炭素原子数2ないし10のアルコールから選択される。該有機酸を溶解しない有機溶媒が適用される場合、本発明の効果が十分に得られないことがある。前記有機溶媒には、レジストパターンとのインターミキシングが生じない範囲で、レジスト溶剤がさらに含まれていてもよい。

[0028] 上記炭素原子数2ないし10のアルコールは直鎖状、分岐状あるいは環状のいずれであってもよく、例えばエタノール、1-プロパノール、2-プロパノール、エチレングリコール、プロピレングリコール、グリセリン、1-ブタノール、2-ブタノール、2-メチル-1-プロパノール、2-メチル-2-プロパノール、1,4-ブタンジオール、ペンタノール、1-メチル-1-ブタノール、2-メチル-1-ブタノール、3-メチル-1-ブタノール、シクロペンタノール、ヘキサノール、4-メチル-2-ペンタノール、シクロヘキサノール、ヘプタノール、シクロヘプタノール、オクチルアルコール、ノニルアルコール、デシルアルコール、ジエチレングリコール、ジ

プロピレングリコール、トリエチレングリコールトリプロピレングリコール、ジエチレングリコールモノエチルエーテル、トリエチレングリコールモノメチルエーテル、4-メトキシ-1-ブタノール、プロピレングリコールモノメチルエーテル、プロピレングリコールモノエチルエーテル、プロピレングリコールモノプロピルエーテル、プロピレングリコールモノブチルエーテル、プロピレングリコールモノフェニルエーテルが挙げられる。

[0029] <その他の添加剤>

さらに本発明のパターン反転膜形成用組成物は、所望により、界面活性剤等の各種添加剤を含んでいてもよい。

[0030] 界面活性剤は上記パターン反転膜形成用組成物の塗布性を向上させるための添加物である。ノニオン系界面活性剤、フッ素系界面活性剤のような公知の界面活性剤を用いることができ、本発明のパターン反転膜形成用組成物に対し例えば0.01質量%以上0.5質量%以下で、例えば0.2質量%以下、好ましくは0.1質量%以下の割合で添加することができる。

[0031] 上記界面活性剤の具体例としては、例えば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ステアリルエーテル、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オレイルエーテル等のポリオキシエチレンアルキルエーテル類、ポリオキシエチレンオクチルフェニルエーテル、ポリオキシエチレンノニルフェニルエーテル等のポリオキシエチレンアルキルアリールエーテル類、ポリオキシエチレン・ポリオキシプロピレンブロックコポリマー類、ソルビタンモノラウレート、ソルビタンモノパルミテート、ソルビタンモノステアレート、ソルビタンモノオレエート、ソルビタントリオレエート、ソルビタントリステアレート等のソルビタン脂肪酸エステル類、ポリオキシエチレンソルビタンモノラウレート、ポリオキシエチレンソルビタンモノパルミテート、ポリオキシエチレンソルビタンモノステアレート、ポリオキシエチレンソルビタントリオレエート、ポリオキシエチレンソルビタントリステアレート等のポリオキシエチレンソルビタン脂肪酸エステル類等のノニオン系界面活性剤、エフトップ〔登録商標〕EF301、同EF3

03、同EF352（三菱マテリアル電子化成（株）（旧）ジェムコ（株）製）、メガフック（登録商標）F171、同F173、同R-30（D1 C（株）製）、フロラードFC430、同FC431（住友スリーエム（株）製）、アサヒガード（登録商標）AG710、サーフロン（登録商標）S-382、同SC101、同SC102、同SC103、同SC104、同SC105、同SC106（旭硝子（株）製）等のフッ素系界面活性剤、オメガノシロキサンポリマーK P341（信越化学工業（株）製）を挙げることができる。

これらの界面活性剤は単独で添加してもよいし、また2種以上の組合せで添加することもできる。

[0032] パターン反転膜の形成方法]

本発明の前記パターン反転膜形成組成物を用いたパターン反転膜の形成方法は、上述のパターン反転膜形成組成物を基板に塗布し、80℃ないし180℃の温度でベークして、膜形成する工程を含む方法である。

上記基板としては、例えばシリコン基板等の半導体基板が用いられ、さらにレジストパターンが表面に形成された段差基板が用いられる。

[0033] 反転パターンの形成方法]

また本発明の反転パターン形成方法は、（a）被加工基板上にレジストパターンを形成する工程、（b）前記レジストパターンを被覆するように前述のパターン反転膜形成組成物を塗布し、80℃ないし180℃の温度で加熱してパターン反転膜を形成する工程、（c）前記パターン反転膜をエッチバックして前記レジストパターンの表面を露出させる工程、及び（d）前記レジストパターンを除去し、反転パターンを形成する工程を含む。

[0034] （a）被加工基板上にレジストパターンを形成する工程は、まず被加工基板上にレジスト材料をスピンナー、コーター等の適当な塗布方法により塗布し、通常80℃ないし180℃程度の温度で乾燥させてレジスト膜を形成する。このときのレジストの膜厚は通常100nmないし1000nmである。

[0035] その後、所定パターンのマスクを介して、可視光線、紫外線、X線等の光

源を用いてレジスト膜を露光し、露光部分を現像液にて現像する。そして必要に応じて露光後加熱（PEB：Post Exposure Bake）を行い、所定のレジストパターンを形成する。

[0036] 上記被加工基板としては、精密集積回路素子の製造に使用される基板（例えば、酸化珪素膜、窒化珪素膜又は酸化窒化珪素膜で被覆されたシリコン基板等の半導体基板、窒化珪素基板、石英基板、ガラス基板（無アルカリガラス、低アルカリガラス、結晶化ガラスを含む）、ITO膜が形成されたガラス基板）を用いることができる。

なお、所望により、被加工基板上に、有機又は無機系の反射防止能を有する下層膜を予め形成していても良い。

[0037] 上記レジスト材料としてはネガ型、ポジ型いずれも使用できる。ノボラック樹脂と1，2-ナフトキノンジアジドスルホン酸エステルとからなるポジ型レジスト、光酸発生剤と酸により分解してアルカリ溶解速度を上昇させる基を有するバインダーからなる化学増幅型レジスト、アルカリ可溶性バインダーと光酸発生剤と酸により分解してレジストのアルカリ溶解速度を上昇させる低分子化合物からなる化学増幅型レジスト、光酸発生剤と酸により分解してアルカリ溶解速度を上昇させる基を有するバインダーと酸により分解してレジストのアルカリ溶解速度を上昇させる低分子化合物からなる化学増幅型レジストなどがあり、例えば、住友化学（株）製、商品名PAR710、同PAR855及びJSR（株）製、商品名AR2772JNが挙げられる。

[0038] また、上記レジストの現像液としては、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、炭酸ナトリウム、ケイ酸ナトリウム、メタケイ酸ナトリウム、アンモニア水等の無機アルカリ類、エチルアミン、n-プロピルアミン等の第一アミン類、ジエチルアミン、ジ-n-ブチルアミン等の第二アミン類、トリエチルアミン、メチルジエチルアミン等の第三アミン類、ジメチルエタノールアミン、トリエタノールアミン等のアルコールアミン類、テトラメチルアンモニウムヒドロキシド、テトラエチルアンモニウムヒドロキシド、コリン等の

第4級アモニウム塩、ピロール、ピペリジン等の環状アミン類、等のアルカリ類の水溶液を使用することができる。さらに、上記アルカリ類の水溶液にイソプロピルアルコール等のアルコール類、ノニオン系等の界面活性剤を適量添加して使用することもできる。これらの中で好ましい現像液は第四級アモニウム塩の水溶液、さらに好ましくはテトラメチルアモニウムヒドロキシドの水溶液である。

なお、アルカリ水溶液からなる現像液で現像した後は、一般に水で洗浄し、乾燥してからその後の工程に用いる。

[0039] 続いて実施される (b) 前記レジストパターンを被覆するように、前述のパターン反転膜形成用組成物を塗布し、パターン反転膜を形成する工程は、レジストパターンが表面に形成された基板 (段差基板) 上に、前述のパターン反転膜形成用組成物を、スピンナー、コーター等の適当な塗布方法により塗布する。その後 80℃ ないし 180℃ の温度でベークしてパターン反転膜を形成する。

好ましくは 80℃ ないし 150℃ でベークすることにより、塗膜中の有機溶媒を迅速に揮発させることができる。このときのベーク時間は通常 10 秒ないし 300 秒間、好ましくは 30 秒ないし 180 秒間である。

上記パターン反転膜の膜厚は特に限定されないが、通常 10 nm ないし 1000 nm であり、好ましくは 50 nm ないし 500 nm である。

[0040] その後、(c) 前記パターン反転膜をエッチバックして前記レジストパターン表面を露出させる工程、及び、(d) 前記レジストパターンを除去し、反転パターンを形成する工程が実施される。詳細には、上述のようにして形成されたパターン反転膜に対して、レジストパターンの表面が露出するまでエッチバック処理を行い、その後、レジストパターンを例えば O_2 エッチング (アッシング) により除去することにより、所望の反転パターンが形成される。

エッチバック処理としては CF_4 などのフッ素系ガスをを用いるドライエッチングや有機酸若しくは有機塩基の水溶液又は有機溶剤を用いるウェットエッチ

チンク、或いはCMP法等が用いられ、処理条件は適宜調整可能である。
またレジストパターンの除去には公知のドライエッチング装置が使用でき、処理条件は適宜調整可能である。

[0041] [パターン反転膜の除去方法]

本発明のパターン反転膜、すなわち、被加工基板上のレジストパターンを被覆し、加熱することで得られたパターン反転膜は、レジストパターンの剥離に通常使用される有機溶剤によって、被加工基板からレジストパターンと共に除去することができる。そして本発明は上記パターン反転膜の除去方法も対象とする。上記パターン反転膜から反転パターンを形成後、その反転パターンのみ除去することもできる。

ここで使用する剥離剤として使用する有機溶剤としては特に限定されず、使用するパターン反転膜形成用組成物、そしてレジスト材料によって適宜選択することができる。

[0042] 本発明において、パターン反転膜の除去に用いる剥離剤として使用する有機溶剤としては、例えば、ジメチルホルホキシド(DMSO)等のホルホキシド類；ジメチルホルホン、ジエチルホルホン、ピス(2-ヒドロキシエチレン)ホルホン、チトラメチレンホルホン、スルホラン等のスルホン類；N-ジメチルホルムアミド、N-メチルホルムアミド、N-ジエチルホルムアミド等のアミド類；N-エチル-2-ピロリドン、N-プロピル-2-ピロリドン、N-ヒドロキシメチル-2-ピロリドン、N-プロピオラクトン、γ-ブチロラクトン、γ-バレロラクトン、δ-バレロラクトン、γ-カプロラクトン、ε-カプロラクトン等のラクタム類；β-プロピオラクトン、γ-ブチロラクトン、γ-バレロラクトン等のラクトン類；1,3-ジメチル-2-イミダゾリジン、1,3-ジエチル-2-イミダゾリジン、1,3-ジイソプロピル-2-イミダゾリジン等のイミダゾリジン類；エチレングリコール、エチレングリコールモノエチルエーテル、エチレングリコールモノメチルエーテル、エチレングリコールモノエチルエーテル、ジエチレングリコールモノメチルエーテル、ジエチレングリコールモノエチルエーテル、ジエチレングリ

流量：1.0 mL／分

標準試料：ポリスチレン（昭和電工（株）製）

[0045] <合成例1乃至3：パターン反転膜形成用組成物に用いる樹脂1～3の調製>

[合成例1：ポリ（メチルーコー3-メタクリロイルオキシプロピル）シルセスキオキサン： $[(\text{メチル})\text{SiO}_{3/2}]_{0.80}[(\text{メタクリロイルオキシプロピル})\text{SiO}_{3/2}]_{0.20}$ の合成]

フラスコに、トルエン80g、3-メタクリロイルオキシプロピルトリメトキシシラン0.10mol、メチルトリメトキシシラン0.40mol、水2.40mol、水酸化セシウム水溶液（50質量%）1g、メタノール200g及び2,6-ジ-tert-ブチルー4-メチルフェノール40mgを仕込み、透明溶液を調製した。前記溶液を攪拌しながら1時間に亘って還流し、溶媒（主にメタノール）を除去した。さらに還流を続け、一定の溶液濃度を維持するために、除去された溶媒と同量のトルエンを添加した。ほとんどのメタノールが除去された後、この溶液は混濁した。さらに還流を続け、溶媒を引き続き除去したところ、大部分の水が除去された時点で溶液は再度透明になった。

続いて温度を約1時間かけてゆっくりと約105℃に上昇させた。その後、得られた透明溶液を冷却し、約230gのトルエンを加えた。ここに3gの酢酸を加え、0.5時間に亘って攪拌した。得られた溶液を、100mLの脱塩水で3回洗浄した。その後、該溶液を孔径1μmの濾紙で濾過した。得られたろ液を50℃の回転式エバポレータに投入し、トルエンを除去した。得られた生成物（固体樹脂）を真空下、常温にて、2時間に亘って乾燥させ、樹脂1を得た。樹脂1の重量平均分子量（Mw）は26,000であった。

[0046] [合成例2：ポリ（メチルーコー3-メタクリロイルオキシプロピル）シルセスキオキサン： $[(\text{メチル})\text{SiO}_{3/2}]_{0.80}[(\text{メタクリロイルオキシプロピル})\text{SiO}_{3/2}]_{0.20}$ の合成]

フラスコに、トルエン 80 g、3-メタクリロイルオキシプロピルトリメトキシシラン 0.10 mol、メチルトリメトキシシラン 0.40 mol、水 2.40 mol、水酸化セシウム水溶液（50 質量%）0.5 g、メタノール 300 g 及び 2,6-ジ-tert-ブチル-4-メチルフェノール 50 mg を仕込み、透明溶液を調製した。前記溶液を攪拌しながら 1 時間に亘って還流し、溶媒（主にメタノール）を除去した。さらに還流を続け、一定の溶液濃度を維持するために、除去された溶媒と同量のトルエンを添加した。ほとんどのメタノールが除去された後、この溶液は混濁した。さらに還流を続け、溶媒を引き続き除去したところ、大部分の水が除去された時点で溶液は再度透明になった。

続いて温度を約 1 時間かけてゆっくりと約 105℃ に上昇させた。その後、得られた透明溶液を冷却し、約 330 g のトルエンを加えた。ここに 3 g の酢酸を加え、0.5 時間に亘って攪拌した。得られた溶液を、100 mL の脱塩水で 1 回洗浄した。その後、該溶液を孔径 1 μm の濾紙で濾過した。得られたろ液を 50℃ の回転式エバポレータに投入し、トルエンを除去した。得られた生成物（固体樹脂）を真空下、常温にて、2 時間に亘って乾燥させ、樹脂 2 を得た。樹脂 2 の重量平均分子量（Mw）は 13,000 であった。

[0047] [合成例 3：樹脂 3 の合成：TEOS/MTEOS/PTMOS（65/30/5）]

フラスコに、テトラエトキシシラン 27.08 g（65 mol%）、メチルトリエトキシシラン 10.70 g（30 mol%）、フェニルトリメトキシシラン 1.98 g（5 mol%）及びアセトン 59.65 g を仕込んだ。このフラスコに冷却管を取り付け、調製しておいた塩酸水溶液（0.01 mol/L）13.15 g を入れた滴下ロートをセットし、室温下で塩酸水溶液をゆっくり滴下し、数分間攪拌した。その後オイルバスにて 85℃ で 4 時間反応させた。反応終了後、反応液の入ったフラスコを放冷してからエバポレータにセットし、反応中生成したエタノールを除去して反応生成物（ポリ

シロキサン)を得た。さらに、エバポレータを用いてアセトンと4-メチル-2-ペンタノールに置換し、樹脂3の溶液を得た。尚、得られた樹脂3の溶液の固形分濃度は、焼成法により測定した結果、25質量%であった。また、得られた樹脂3(固形分)の重量平均分子量(Mw)は2,000であった。なお、本合成例で得られた樹脂3は、前記式(1)で表される構造単位及び前記式(2)で表される構造単位を有するポリシロキサンに該当しない。

[0048] <実施例1乃至18、比較例1乃至9：パターン反転膜形成用組成物の調製>

[実施例1：樹脂1 / アスコルビン酸]

合成例1で得られた樹脂1(ポリマー)5gと4-メチル-2-ペンタノール45gを用いて10質量%の溶液を得た。その溶液にアスコルビン酸0.025g(樹脂1の質量に対して0.5質量%)、4-メチル-2-ペンタノール100gを夫々加え、溶液を孔径0.1μmのフィルタでろ過しパターン反転膜形成用組成物を得た。

[0049] [実施例2：樹脂1 / マレイン酸]

合成例1で得られた樹脂1(ポリマー)5gと4-メチル-2-ペンタノール45gを用いて10質量%の溶液を得た。その溶液にマレイン酸0.025g(樹脂1の質量に対して0.5質量%)、4-メチル-2-ペンタノール75gを夫々加え、溶液を孔径0.1μmのフィルタでろ過しパターン反転膜形成用組成物を得た。

[0050] [実施例3：樹脂1 / サリチル酸(添加量：0.5質量%)]

合成例1で得られた樹脂1(ポリマー)5gと4-メチル-2-ペンタノール45gを用いて10質量%の溶液を得た。その溶液にサリチル酸0.025g(樹脂1の質量に対して0.5質量%)、4-メチル-2-ペンタノール75gを夫々加え、溶液を孔径0.1μmのフィルタでろ過しパターン反転膜形成用組成物を得た。

[0051] [実施例4：樹脂1 / 3-ヒドロキシ安息香酸]

合成例1で得られた樹脂1（ポリマー）5 gと4-メチル-2-ペンタノール45 gを用いて10質量%の溶液を得た。その溶液に3-ヒドロキシ安息香酸0.025 g（樹脂1の質量に対して0.5質量%）、4-メチル-2-ペンタノール75 gを夫々加え、溶液を孔径0.1 μm のフィルタでろ過しパターン反転膜形成用組成物を得た。

[0052] [実施例5：樹脂1 / 4-ヒドロキシ安息香酸]

合成例1で得られた樹脂1（ポリマー）5 gと4-メチル-2-ペンタノール45 gを用いて10質量%の溶液を得た。その溶液に4-ヒドロキシ安息香酸0.025 g（樹脂1の質量に対して0.5質量%）、4-メチル-2-ペンタノール75 gを夫々加え、溶液を孔径0.1 μm のフィルタでろ過しパターン反転膜形成用組成物を得た。

[0053] [実施例6：樹脂1 / 2,6-ジヒドロキシ安息香酸]

合成例1で得られた樹脂1（ポリマー）5 gと4-メチル-2-ペンタノール45 gを用いて10質量%の溶液を得た。その溶液に2,6-ジヒドロキシ安息香酸0.025 g（樹脂1の質量に対して0.5質量%）、4-メチル-2-ペンタノール75 gを夫々加え、溶液を孔径0.1 μm のフィルタでろ過しパターン反転膜形成用組成物を得た。

[0054] [実施例7：樹脂1 / 3,5-ジヒドロキシ安息香酸]

合成例1で得られた樹脂1（ポリマー）5 gと4-メチル-2-ペンタノール45 gを用いて10質量%の溶液を得た。その溶液に3,5-ジヒドロキシ安息香酸0.025 g（樹脂1の質量に対して0.5質量%）、4-メチル-2-ペンタノール75 gを夫々加え、溶液を孔径0.1 μm のフィルタでろ過しパターン反転膜形成用組成物を得た。

[0055] [実施例8：樹脂1 / 3,4,5-トリヒドロキシ安息香酸]

合成例1で得られた樹脂1（ポリマー）5 gと4-メチル-2-ペンタノール45 gを用いて10質量%の溶液を得た。その溶液に3,4,5-トリヒドロキシ安息香酸0.025 g（樹脂1の質量に対して0.5質量%）、4-メチル-2-ペンタノール75 gを夫々加え、溶液を孔径0.1 μm の

フィルタでろ過しパターン反転膜形成用組成物を得た。

[0056] [実施例 9 : 樹脂 1 / フタル酸]

合成例 1 で得られた樹脂 1 (ポリマー) 5 g と 4-メチル-2-ペンタノール 45 g を用いて 10 質量%の溶液を得た。その溶液にフタル酸 0.025 g (樹脂 1 の質量に対して 0.5 質量%)、4-メチル-2-ペンタノール 75 g を夫々加え、溶液を孔径 0.1 μm のフィルタでろ過しパターン反転膜形成用組成物を得た。

[0057] [実施例 10 : 樹脂 1 / 1, 2, 4, 5-ベンゼンテトラカルボン酸]

合成例 1 で得られた樹脂 1 (ポリマー) 5 g と 4-メチル-2-ペンタノール 45 g を用いて 10 質量%の溶液を得た。その溶液に 1, 2, 4, 5-ベンゼンテトラカルボン酸 0.025 g (樹脂 1 の質量に対して 0.5 質量%)、4-メチル-2-ペンタノール 75 g を夫々加え、溶液を孔径 0.1 μm のフィルタでろ過しパターン反転膜形成用組成物を得た。

[0058] [実施例 11 : 樹脂 1 / クエン酸]

合成例 1 で得られた樹脂 1 (ポリマー) 5 g と 4-メチル-2-ペンタノール 45 g を用いて 10 質量%の溶液を得た。その溶液にクエン酸 0.025 g (樹脂 1 の質量に対して 0.5 質量%)、4-メチル-2-ペンタノール 75 g を夫々加え、溶液を孔径 0.1 μm のフィルタでろ過しパターン反転膜形成用組成物を得た。

[0059] [実施例 12 : 樹脂 1 / サリチル酸 (添加量 : 0.1 質量%)]

合成例 1 で得られた樹脂 1 (ポリマー) 5 g と 4-メチル-2-ペンタノール 45 g を用いて 10 質量%の溶液を得た。その溶液にサリチル酸 0.005 g (樹脂 1 の質量に対して 0.1 質量%)、4-メチル-2-ペンタノール 50 g を夫々加え、溶液を孔径 0.1 μm のフィルタでろ過しパターン反転膜形成用組成物を得た。

[0060] [実施例 13 : 樹脂 1 / サリチル酸 (添加量 : 0.25 質量%)]

合成例 1 で得られた樹脂 1 (ポリマー) 5 g と 4-メチル-2-ペンタノール 45 g を用いて 10 質量%の溶液を得た。その溶液にサリチル酸 0.0

125 g（樹脂1の質量に対して0.25質量%）、4-メチル-2-ペンタノール50 gを夫々加え、溶液を孔径0.1 μ mのフィルタでろ過しパターン反転膜形成用組成物を得た。

[0061] [実施例14：樹脂1 / サリチル酸（添加量：0.75質量%）]

合成例1で得られた樹脂1（ポリマー）5 gと4-メチル-2-ペンタノール45 gを用いて10質量%の溶液を得た。その溶液にサリチル酸0.0375 g（樹脂1の質量に対して0.75質量%）、4-メチル-2-ペンタノール50 gを夫々加え、溶液を孔径0.1 μ mのフィルタでろ過しパターン反転膜形成用組成物を得た。

[0062] [実施例15：樹脂1 / サリチル酸（添加量：1質量%）]

合成例1で得られた樹脂1（ポリマー）5 gと4-メチル-2-ペンタノール45 gを用いて10質量%の溶液を得た。その溶液にサリチル酸0.05 g（樹脂1の質量に対して1質量%）、4-メチル-2-ペンタノール50 gを夫々加え、溶液を孔径0.1 μ mのフィルタでろ過しパターン反転膜形成用組成物を得た。

[0063] [実施例16：樹脂1 / サリチル酸（添加量：3質量%）]

合成例1で得られた樹脂1（ポリマー）5 gと4-メチル-2-ペンタノール45 gを用いて10質量%の溶液を得た。その溶液にサリチル酸0.15 g（樹脂1の質量に対して3質量%）、4-メチル-2-ペンタノール50 gを夫々加え、溶液を孔径0.1 μ mのフィルタでろ過しパターン反転膜形成用組成物を得た。

[0064] [実施例17：樹脂1 / サリチル酸（添加量：5質量%）]

合成例1で得られた樹脂1（ポリマー）5 gと4-メチル-2-ペンタノール45 gを用いて10質量%の溶液を得た。その溶液にサリチル酸0.25 g（樹脂1の質量に対して5質量%）、4-メチル-2-ペンタノール50 gを夫々加え、溶液を孔径0.1 μ mのフィルタでろ過しパターン反転膜形成用組成物を得た。

[0065] [実施例18：樹脂2 / アスコルビン酸]

合成例2で得られた樹脂2（ポリマー）5 gと4-メチル-2-ペンタノール45 gを用いて10質量%の溶液を得た。その溶液にアスコルビン酸0.025 g（樹脂1の質量に対して0.5質量%）、4-メチル-2-ペンタノール100 gを夫々加え、溶液を孔径0.1 μm のフィルタでろ過しパターン反転膜形成用組成物を得た。

[0066] [比較例1：樹脂1のみ]

合成例1で得られた樹脂1（ポリマー）3.5 gと4-メチル-2-ペンタノール96.5 gを用いて3.5質量%の溶液を得た。溶液を孔径0.1 μm のフィルタでろ過し、パターン反転膜形成用組成物を得た。

[0067] [比較例2：樹脂3 / サリチル酸]

合成例3で得られた樹脂3（ポリマー）溶液10 gに、サリチル酸0.0125 g（樹脂3（固形分）の質量に対して0.5質量%）、4-メチル-2-ペンタノール60 gを夫々加えた。溶液を孔径0.1 μm のフィルタでろ過し、パターン反転膜形成用組成物を得た。

[0068] [比較例3：樹脂3 / 3-ヒドロキシ安息香酸]

合成例3で得られた樹脂3（ポリマー）溶液10 gに、3-ヒドロキシ安息香酸0.0125 g（樹脂3（固形分）の質量に対して0.5質量%）、4-メチル-2-ペンタノール60 gを夫々加えた。溶液を孔径0.1 μm のフィルタでろ過し、パターン反転膜形成用組成物を得た。

[0069] [比較例4：樹脂1 / 安息香酸]

合成例1で得られた樹脂1（ポリマー）5 gと4-メチル-2-ペンタノール45 gを用いて10質量%の溶液を得た。その溶液に安息香酸0.025 g（樹脂1の質量に対して0.5質量%）、4-メチル-2-ペンタノール75 gを夫々加え、溶液を孔径0.1 μm のフィルタでろ過し、パターン反転膜形成用組成物を得た。なお、本比較例で用いた安息香酸は、カルボキシル基及び／又はヒドロキシ基を少なくとも2つ有する有機酸に該当しない。

[0070] [比較例5：樹脂1 / 4-メチル安息香酸]

合成例1で得られた樹脂1（ポリマー）5 gと4-メチル-2-ペンタノール45 gを用いて10質量%の溶液を得た。その溶液に4-メチル安息香酸0.025 g（樹脂1の質量に対して0.5質量%）、4-メチル-2-ペンタノール75 gを夫々加え、溶液を孔径0.1 μ mのフィルタでろ過し、パターン反転膜形成用組成物を得た。なお、本比較例で用いた4-メチル安息香酸は、カルボキシル基及び／又はヒドロキシ基を少なくとも2つ有する有機酸に該当しない。

[0071] [比較例6：樹脂1 / 4-ブロモ安息香酸]

合成例1で得られた樹脂1（ポリマー）5 gと4-メチル-2-ペンタノール45 gを用いて10質量%の溶液を得た。その溶液に4-ブロモ安息香酸0.025 g（樹脂1の質量に対して0.5質量%）、4-メチル-2-ペンタノール75 gを夫々加え、溶液を孔径0.1 μ mのフィルタでろ過し、パターン反転膜形成用組成物を得た。なお、本比較例で用いた4-ブロモ安息香酸は、カルボキシル基及び／又はヒドロキシ基を少なくとも2つ有する有機酸に該当しない。

[0072] [比較例7：樹脂1 / 4-アミノ安息香酸]

合成例1で得られた樹脂1（ポリマー）5 gと4-メチル-2-ペンタノール45 gを用いて10質量%の溶液を得た。その溶液に4-アミノ安息香酸0.025 g（樹脂1の質量に対して0.5質量%）、4-メチル-2-ペンタノール75 gを夫々加え、溶液を孔径0.1 μ mのフィルタでろ過し、パターン反転膜形成用組成物を得た。なお、本比較例で用いた4-アミノ安息香酸は、カルボキシル基及び／又はヒドロキシ基を少なくとも2つ有する有機酸に該当しない。

[0073] [比較例8：樹脂1 / DL- α -トコフェロール]

合成例1で得られた樹脂1（ポリマー）5 gと4-メチル-2-ペンタノール45 gを用いて10質量%の溶液を得た。その溶液にトコフェロール0.025 g（樹脂1の質量に対して0.5質量%）、4-メチル-2-ペンタノール75 gを夫々加え、溶液を孔径0.1 μ mのフィルタでろ過し、パ

ターン反転膜形成用組成物を得た。なお、本比較例で用いたDL-α-トコフェロールは、カルボキシシル基及び／又はヒドロキシ基を少なくとも2つ有する有機酸に該当しない。

[0074] 比較例9：樹脂1／酢酸DL-α-トコフェロール]

合成例1で得られた樹脂1（ポリマー）5gと4-メチル-2-ペンタノール45gを用いて10質量%の溶液を得た。その溶液にトコフェロール酢酸エステル0.025g（樹脂1の質量に対して0.5質量%）、4-メチル-2-ペンタノール75gを夫々加え、溶液を孔径0.1μmのフィルタでろ過し、パターン反転膜形成用組成物を得た。なお、本比較例で用いた酢酸DL-α-トコフェロールは、カルボキシシル基及び／又はヒドロキシ基を少なくとも2つ有する有機酸に該当しない。

[0075] <性能評価>

実施例1乃至18及び比較例1乃至9の各パターン反転膜形成用組成物について次の試験を行った。

シリコン基板上に、上記実施例又は比較例のパターン反転膜形成用組成物を塗布し、110℃/60秒間加熱ベークすることによりパターン反転膜を得て、膜厚測定装置（東朋テクノロジー（株）製、NanoSpec 6100）を用いて膜厚を測定した（塗布後の膜厚）。

次に、有機溶剤（プロピレングリコールモノメチルエーテルアセテート（PGMEA）：プロピレングリコールモノメチルエーテル（PGME）＝7：3（質量比））を用いて浸漬処理を行い、パターン反転膜の剥離試験を行った。その後、シリコン基板上の膜厚を上記と同様に測定した（リワーク処理後の膜厚）。

なお、上記膜厚測定装置の測定下限値は10nm以下であることから、膜厚測定結果が10nm以下となった場合には「検出下限以下」とした。

[0076] リワーク処理後の膜厚結果より、検出下限以下の場合を○、膜厚を測定できた（10nmを超える膜厚）場合を×として、リワーク可否の判断を行った。

以上、得られた結果を表 1 に示す。

[0077] [表1]

	塗布後の膜厚	リワーク処理後の膜厚	リワーク可否
実施例1	103.3nm	検出下限以下	○
実施例2	122.9nm	検出下限以下	○
実施例3	122.2nm	検出下限以下	○
実施例4	122.2nm	検出下限以下	○
実施例5	121.8nm	検出下限以下	○
実施例6	122.5nm	検出下限以下	○
実施例7	122.5nm	検出下限以下	○
実施例8	122.8nm	検出下限以下	○
実施例9	122.1nm	検出下限以下	○
実施例10	121.9nm	検出下限以下	○
実施例11	122.8nm	検出下限以下	○
実施例12	160.5nm	検出下限以下	○
実施例13	160.5nm	検出下限以下	○
実施例14	159.9nm	検出下限以下	○
実施例15	158.9nm	検出下限以下	○
実施例16	155.8nm	検出下限以下	○
実施例17	152.6nm	検出下限以下	○
実施例18	120.1nm	検出下限以下	○
比較例1	100.4nm	86.7nm	×
比較例2	81.6nm	22.7nm	×
比較例3	81.4nm	41.0nm	×
比較例4	121.3nm	104.7nm	×
比較例5	121.2nm	101.8nm	×
比較例6	118.9nm	65.7nm	×
比較例7	119.0nm	60.9nm	×
比較例8	114.1nm	106.0nm	×
比較例9	113.7nm	105.1nm	×

[0078] 表 1 に示すように、本発明のパターン反転膜形成用組成物は、有機溶剤によって除去可能であり、リワーク可能であることが確認された。

[0079] <本発明のパターン反転膜形成用組成物を用いたパターンニング例 1>

膜厚 200nm の有機下層膜を形成したシリコン基板上に、ARF 用レジスト溶液（製品名 PAR855、住友化学（株）製）を、スピナーを用いて塗布した。ホットプレート上で、110℃で 60 秒間加熱することにより膜厚 100nm のレジスト膜を形成した。ARF エキシレイザー用露光装置（（株）ニコン製、S307E）を用い、所定の条件で露光した。目的の線幅を 65nm ラインアンプスペースとし、露光後、105℃で 60 秒間加熱（PEB）を行い、さらにアルカリリソ処理を行い、レジストパターンを得た。得られたレジストパターンについて、断面の形状を SEM に撮影した。得られた断面 SEM 像を図 1 に示す。

得られたレジストパターン上に、実施例 1 で得たパターン反転膜形成用組成物を塗布し、1,500rpm で 60 秒スピンして該組成物中の有機溶媒をスピンドライし、110℃で 60 秒間ベーク処理を行い、パターン反転膜を形成した。得られたパターン反転膜について、断面の形状を SEM にて撮影した。結果を図 2 に示す。

[0080] 次に、ドライエッチング装置としてサムコ（株）製 RIE-10NR を使用し、 $CF_4/Ar=50/200sccm$ 、15Pa、200W の条件にてドライエッチングを行い、前記レジストパターン上部を露呈させた。この状態の断面の形状を観察した SEM 像を図 3 に示す。次に、 $O_2/N_2=10/20sccm$ 、1Pa、300W の条件にてドライエッチングを行い、前記レジストパターンを除去して反転パターンを得た。得られた反転パターンの断面形状の断面 SEM 像を図 4 に示す。その後 $CF_4/Ar=50/200sccm$ 、15Pa、200W の条件にて、得られた反転パターンをエッチングマスクとしてドライエッチングしたところ、前記有機下層膜にパターンニング可能であった。パターンニングした結果の断面形状の断面 SEM 像を図 5 に示す。

[0081] <本発明のパターン反転膜形成用組成物を用いたパターンニング例 2>

上記パターンニング例 1 と同様の方法、装置及び条件で、図 6 に示す断面 SEM 像を示すレジストパターンを形成した。続いて、レジストパターン上に、実施例 18 で得たパターン反転膜形成用組成物を用いてパターン反転膜を形成した後、ドライエッチングを行い、図 7 に示す断面 SEM 像に示すように前記レジストパターン上部を露呈させた。次に上記パターンニング例 1 と同様の方法、装置及び条件で、ドライエッチングを行い、前記レジストパターンを除去して反転パターンを得、その後、該反転パターンをエッチングマスクとしてドライエッチングしたところ、前記有機下層膜にパターンニング可能であった。パターンニングした結果の断面形状の断面 SEM 像を図 8 に示す。

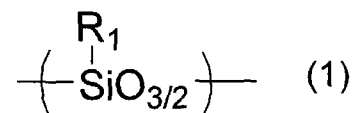
[0082] 上述の<本発明のパターン反転膜形成用組成物を用いたパターンニング例 1>及び<本発明のパターン反転膜形成用組成物を用いたパターンニング例 2>に示すように、本発明のパターン反転膜形成用組成物を用いて、目的とする反転パターンを形成できることが確認された。

請求の範囲

[請求項1] ポリシロキサン、添加剤及び有機溶媒を含むパターン反転膜形成用組成物であって、

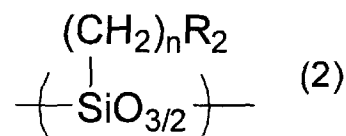
前記ポリシロキサンは、下記式（１）で表される構造単位及び式（２）で表される構造単位を有し、

[化1]



（式中、 R_1 は炭素原子数１乃至８のアルキル基を表す。）

[化2]



（式中、 R_2 はアクリロイルオキシ基又はメタアクリロイルオキシ基を表し、 n は２乃至４の整数を表す。）並びに、

前記添加剤がカルボキシル基及び／又はヒドロキシ基を少なくとも２つ有する有機酸であることを特徴とする組成物。

[請求項2] 前記添加剤が

マレイン酸、クエン酸、サリチル酸、３－ヒドロキシ安息香酸、４－ヒドロキシ安息香酸、２，６－ジヒドロキシ安息香酸、３，５－ジヒドロキシ安息香酸、ガリック酸、フタル酸、ピロメリット酸及びアスコルビン酸からなる群から選択される有機酸である、

請求項１に記載のパターン反転膜形成用組成物。

[請求項3] 前記有機溶媒が、炭素原子数２乃至１０のアルコール類から選択される、

請求項１又は請求項２に記載のパターン反転膜形成用組成物。

[請求項4] 前記ポリシロキサンが、

前記式（１）で表される構造単位と前記式（２）で表される構造単位

をモル比で50：50乃至99：1で含むことを特徴とする、
請求項1乃至請求項3のうちいずれか一項に記載のパターン反転膜形成用組成物。

[請求項5] 被加工基板上にレジストパターンを形成する工程、
前記レジストパターンのパターンを被覆するように、請求項1乃至請求項4のうちいずれか一項に記載のパターン反転膜形成用組成物を塗布し、80℃ないし180℃の温度で加熱してパターン反転膜を形成する工程、
前記パターン反転膜をエッチバックして前記レジストパターンの表面を露出させる工程、及び
前記レジストパターンを除去し、反転パターンを形成する工程
とを含む反転パターン形成方法。

[請求項6] 請求項1乃至請求項4のうちいずれか一項に記載のパターン反転膜形成用組成物により、被加工基板上のレジストパターンを被覆し、加熱することで得られたパターン反転膜を、有機溶剤によって前記レジストパターンと共に剥離するパターン反転膜の除去方法。

[請求項7] 前記有機溶剤は、プロピレングリコールモノメチルエーテル、プロピレングリコールモノメチルエーテルアセテート、乳酸エチル及びシクロヘキサノンからなる群から選択される1種又は2種以上からなる、
請求項6に記載のパターン反転膜の除去方法。