

(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
2021年9月16日(16.09.2021)



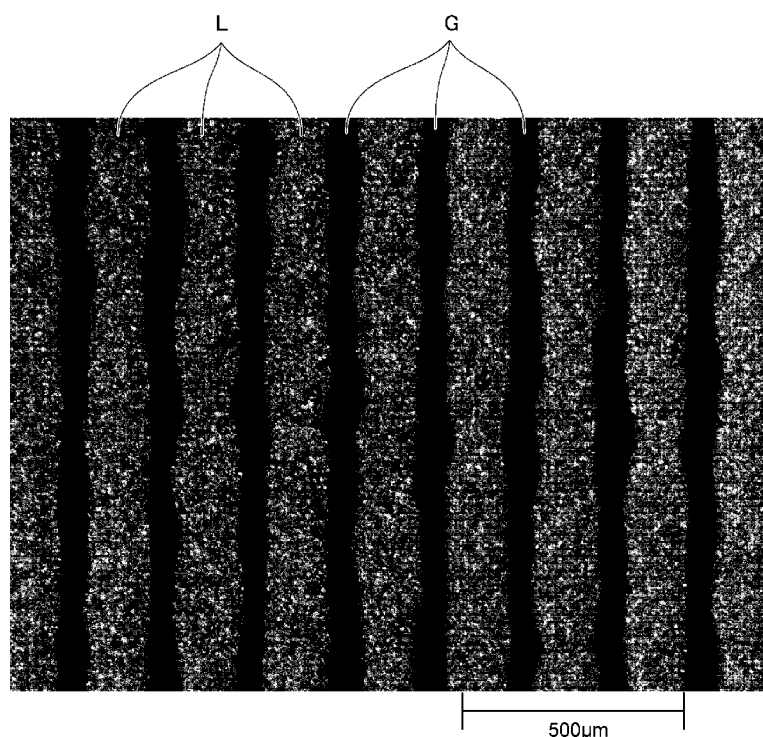
(10) 国際公開番号

WO 2021/182034 A1

- (51) 国際特許分類:
H01B 1/00 (2006.01) *H01B 5/14* (2006.01)
H01B 1/22 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2021/005749
- (22) 国際出願日: 2021年2月16日(16.02.2021)
- (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 2020-041720 2020年3月11日(11.03.2020) JP
- (71) 出願人: 東 洋 ア ル ミ ニ ウ ム 株 式 会 社(TOYO ALUMINIUM KABUSHIKI KAISHA)
- [JP/JP]; 〒5410056 大阪府大阪市中央区久太郎町三丁目6番8号 Osaka (JP).
- (72) 発明者: 中 谷 敏 雄 (NAKATANI Toshio);
〒5410056 大阪府大阪市中央区久太郎町三丁目6番8号 東洋アルミニウム株式会社内 Osaka (JP). 辻 孝 輔(TSUJI Kosuke); 〒5410056 大阪府大阪市中央区久太郎町三丁目6番8号 東洋アルミニウム株式会社内 Osaka (JP). 松 村 賢(MATSUMURA Ken); 〒5410056 大阪府大阪市中央区久太郎町三丁目6番8号 東洋アルミニウム株式会社内 Osaka (JP).
- (74) 代理人: 赤岡 和夫, 外(AKAOKA Kazuo et al.);
〒5410047 大阪府大阪市中央区淡路町2丁目1番13号 弘栄ビルディング5階 Osaka (JP).

(54) Title: ELECTROCONDUCTIVE PASTE AND ELECTROCONDUCTIVE PATTERN USING SAME

(54) 発明の名称: 導電ペーストおよびそれを用いた導電パターン



(57) Abstract: The purpose of the present invention is to provide: an electroconductive paste which is capable of printing an electroconductive pattern with high accuracy, said electroconductive pattern being suppressed in variation in the line width, and which enables the printed electroconductive pattern to have high electrical conductivity, high thermal conductivity, high migration resistance and the like; and an electroconductive pattern which uses this electroconductive paste. The present invention provides: an electroconductive paste containing silver-coated copper flakes and a silver-coated sil-



WO 2021/182034 A1

(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, IT, 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, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, 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:

一 国際調査報告(条約第21条(3))

ica powder, said electroconductive paste being obtained by adding a silver-coated silica powder to silver-coated copper flakes serving as a base material; and an electroconductive pattern which uses this electroconductive paste. In addition, this electroconductive paste may additionally contain a binder resin, a solvent and a curing agent.

(57) 要約: 本発明は、線幅のバラつきが少なく、高精度の導電パターンの印刷が可能であり、印刷された導電パターンにおいても高い電気伝導性および熱伝導性、高い耐マイグレーション性等を有する導電ペーストおよびそれを用いた導電パターンを提供することを目的とする。本発明によれば、導電ペーストとして、銀被覆銅フレークをベースとして、これに銀被覆シリカ粉を添加することで、銀被覆銅フレークと、銀被覆シリカ粉とを含む導電ペーストおよびそれを用いた導電パターンが提供される。また、本発明の導電ペーストは、さらにバインダー樹脂と、溶剤と、そして硬化剤とを含んでもよい。

明 細 書

発明の名称：導電ペーストおよびそれを用いた導電パターン

技術分野

[0001] 本発明は、例えば、電子デバイスの電極などの導電パターンを形成するために用いられる導電ペーストおよびそれを用いた導電パターンに関する。

背景技術

[0002] IC、LSI等の半導体素子（半導体チップ）をリードフレームと呼ばれる金属片に載置し固定したり、印刷等により基板に回路を形成したり、或いはコンデンサなどの電子部品の電極を形成するため等に、多様な用途に導電ペーストが用いられている。

[0003] また、近年の半導体チップの集積度の向上、回路基板の回路の高密度化に伴い、導電ペーストには、線幅のバラつきが少なく、高い精度で回路パターンの印刷が可能であり、また印刷された回路パターンにおいても、電気伝導性および熱伝導性が高く、高い耐マイグレーション性を有しており、そして適度な粘度や流動性を有することにより優れた作業性を備えていることが求められている。

[0004] 例えば、特開2012-18783号公報（特許文献1）では、平均粒子径0.5 μm 以上の銀粒子に平均一次粒子径10nm以上200nm以下の銀微粒子を添加して導電ペーストの流動性の低下を抑制することにより、体積抵抗率が低い導電膜の配線を形成することができ、且つ基板に対する密着性や印刷性を向上させた導電ペーストが開示されている。

[0005] また、特開2019-102273号公報（特許文献2）では、電氣的に低い抵抗を維持したまま、細線形状を維持できるだけの適正な粘度を有するように、ナノ粒子を含む3種類のフィラーを使用することにより、粘度の低下を抑制した導電ペーストが開示されている。

[0006] しかしながら、特許文献1および2に記載の導電ペーストでは、ナノサイズのフィラーの分散が難しく、流動性が高くなり易い傾向がある。流動性が

高過ぎる場合、印刷後に導電ペーストが滲んでしまい、線幅にバラつきが生じ、その結果回路のショートの原因となるという問題があった。また、これらの導電ペーストを用いて形成した導電パターンは、必ずしも高い耐マイグレーション性を有していないという問題もあった。

[0007] また、銀粒子などの導電性粉体は充填量が多くなると分散し難くなり、それ故、従来のフレーク状（または扁平状）の銀粉や球状銀粉等を高充填した組成物は、外観不良が生じ易く、また接着強度や作業性が低下するなどの問題もあった。

先行技術文献

特許文献

[0008] 特許文献1：特開2012-18783号公報

特許文献2：特開2019-102273号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0009] そこで、本発明は、線幅のバラつきが少なく、高い精度で導電パターンの印刷が可能であり、また印刷された導電パターンにおいても、電気伝導性が高く、高い耐マイグレーション性を有しており、そして適度な粘度や流動性を有することにより優れた作業性を備えた導電ペーストおよびそれを用いた導電パターン（回路パターン）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] 本発明者らは、上記課題に鑑み、印刷時の滲みによる線幅のバラつきやマイグレーションの発生を抑制するのに有効であり、そして高い電気伝導性や優れた作業性を実現するための導電性粉体の種類、形状および異なる導電性粉体との組み合わせ等について鋭意検討を重ねた結果、導電ペーストとして、銀被覆銅フレークをベースとして、これに銀被覆シリカ粉を添加することで上記の課題を解決できることを見出し、本発明を完成するに至った。

[0011] すなわち、本発明によれば、銀被覆銅フレークと、銀被覆シリカ粉とを含

む導電ペーストおよびそれを用いた導電パターンが提供される。また、本発明の導電ペーストは、さらにバインダー樹脂と、溶剤と、そして硬化剤とを含んでいてもよい。

[0012] 本発明の導電ペーストは、銀被覆銅フレークおよび銀被覆シリカ粉と、そしてそれらへバインダー樹脂を加えることによりペースト状に成形された組成物である。銀被覆銅フレークと銀被覆シリカ粉とバインダー樹脂とを含んでいれば、本発明の効果が損なわれない範囲で、必要に応じて他に溶剤、消泡剤など他の成分を含んでいてもよい。

[0013] 本発明で用いられる銀被覆銅フレークは、銀で被覆されたフレーク状の銅粉であれば、特に限定されることなく、公知のものを使用することができる。銀被覆銅フレークの体積平均粒子径 (D_{50}) は $1.0\ \mu\text{m}$ 以上 $50\ \mu\text{m}$ 以下であることが好ましく、 $2.0\ \mu\text{m}$ 以上 $20\ \mu\text{m}$ 以下であることがより好ましい。特に銀被覆銅フレークの体積平均粒子径 (D_{50}) が $2.0\ \mu\text{m}$ 以上 $20.0\ \mu\text{m}$ 以下であれば、回路を描画する際細線への対応が極めて容易となる。なお、銀で被覆する銅粉としては、球状または略球状の銅粉またはフレーク状の銅粉が知られているが、回路形成後の電氣的接点の減少を抑制し、電氣的抵抗の増大を抑える観点から、本発明では銀被覆の銅フレークを用いることが好ましい。

[0014] また、銀被覆銅フレークは、銀で完全に被覆されていてもよいし、一部銅が露出していてもよい。銀で完全に被覆されている方が、比抵抗値が小さくなるために好適である。銀被覆銅フレークの配合量は、導電ペーストの全不揮発分に対して 10 体積%以上 40 体積%以下であることが好ましく、 30 体積%以上 40 体積%以下であれば、より好ましい。銀被覆銅フレークの配合量が 10 体積%以上 40 体積%以下であれば、比抵抗値を低く抑えながら、適度な粘度や流動性を有することにより作業性の向上を図ることができる。

[0015] 本発明に用いられる銀被覆シリカ粉は、銀で被覆されたシリカ粉であれば、特に限定されることなく、公知のものを使用することができる。銀被覆シ

リカ粉の体積平均粒子径 (D_{50}) は $0.050\ \mu\text{m}$ 以上 $50.0\ \mu\text{m}$ 以下であることが好ましく、 $0.1\ \mu\text{m}$ 以上 $5.0\ \mu\text{m}$ 以下であることがより好ましい。特に銀被覆シリカ粉の体積平均粒子径 (D_{50}) が $0.1\ \mu\text{m}$ 以上 $5.0\ \mu\text{m}$ 以下であれば、高い充填率を達成することにより比抵抗値を低く抑えることができる。

[0016] また、銀被覆シリカ粉は、銀で完全に被覆されていてもよいし、一部シリカが露出していてもよい。銀で完全に被覆されている方が、比抵抗値が小さくなるために好適である。銀被覆シリカ粉の配合量は、銀被覆銅フレークと銀被覆シリカ粉の体積比が $99:1$ から $15:85$ の範囲であることが好ましく、 $99:1$ から $20:80$ の範囲であることがより好ましい。

[0017] 銀被覆銅フレークと銀被覆シリカ粉の体積比が $99:1$ から $15:85$ の範囲であれば、得られた導電ペーストの流動性が特に好適となり、印刷した際の線のバラつきが小さくなると共に、形成された回路パターンの電気伝導性や耐マイグレーション性も向上する。また、銀被覆シリカ粉の形状は、粒子であれば特に限定されることなく使用することができる。粒子状であれば、流動性に優れるため、特に好適に用いられる。

[0018] なお、本願明細書において「から」、「～」を用いて示された数値（比率）範囲は、「から」、「～」の前後に記載される数値（比率）をそれぞれ最小値（比率）および最大値（比率）として含む範囲を示している。

[0019] 本発明に用いられるバインダー樹脂としては、特に限定されることなく公知の樹脂を使用することができる。熱硬化性樹脂としては、エポキシ樹脂、フェノール樹脂、尿素樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、アルキド樹脂、ポリウレタン、熱硬化性ポリイミドなどが挙げられる。また、末端に官能基が残存したポリエチレン、ポリプロピレン、ポリスチレン、ポリ塩化ビニル、ポリエステル、ポリアミド等の熱可塑性樹脂を硬化剤と併せて使用してもよい。

[0020] スクリーン印刷のような各種印刷法に適した作業性や印刷性を実現させるために、樹脂バインダーを、導電ペーストの全不揮発分に対して 30 体積%

以上60体積%以下の比率で配合することが好ましい。

[0021] 本発明の導電性ペーストに用いられる溶剤に、特に限定はない。使用する樹脂の溶解性や印刷方法等の種類に応じて、適宜選択することができる。本発明の溶剤の例としては、エステル系溶剤、ケトン系溶剤、グリコールエーテル系溶剤、脂肪族系溶剤、脂環族系溶剤、芳香族系溶剤、アルコール系溶剤、水等の1種または2種以上を混合したものが挙げられる。

[0022] なお、エステル系溶剤の例としては、酢酸エチル、酢酸イソプロピル、酢酸n-ブチル、酢酸イソブチル、酢酸アミル、乳酸エチル、炭酸ジメチル等が挙げられる。ケトン系溶剤としては、アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトンベンゼン、ジイソブチルケトン、ジアセトンアルコール、イソホロン、シクロヘキサンノン等が挙げられる。グリコールエーテル系溶剤としては、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イソプロピルエーテル、エチレングリコールモノブチルエーテル等、これらモノエーテル類の酢酸エステル、ジエチレングリコールジメチルエーテル、ジエチレングリコールジエチルエーテル、ジエチレングリコールモノエチルエーテル、ジエチレングリコールモノブチルエーテル、プロピレングリコールモノメチルエーテル、プロピレングリコールモノエチルエーテル等や、これらモノエーテル類の酢酸エステル等が挙げられる。

[0023] 他方、脂肪族系溶剤の例としては、n-ヘプタン、n-ヘキサン、イソヘキサン、イソヘプタン等が挙げられる。脂環族系溶剤の例としては、メチルシクロヘキサン、エチルシクロヘキサン、シクロヘキサン等が挙げられる。芳香族系溶剤の例としては、トルエン、キシレン、テトラリン等が挙げられる。アルコール系溶剤（上述のグリコールエーテル系溶剤を除く）の例としては、エタノール、プロパノール、ブタノール等が挙げられる。

[0024] また、上述した本発明の導電ペーストを用いてPET樹脂シート上に、直線状の複数のラインを100 μ m程度の間隔を空けて印刷した回路パターンにおいては、線幅のバラつきが小さいために隣り合うライン同士が短絡（接触）することがなく、また、各ラインの電気伝導性にも優れた回路パターン

を得ることができる。

発明の効果

[0025] 本発明の導電ペーストは、適度な粘度、適度な流動性を有するために優れた作業性を備えており、そして線幅のバラつきが少なく、高い精度で回路パターンの印刷が可能であるという優れた効果を奏すると共に、印刷された導電パターンにおいても、電気伝導性が高く、高い耐マイグレーション性を有するという優れた効果を奏する。

図面の簡単な説明

[0026] [図1]実施例4の導電ペーストを用いて印刷した回路パターン（導電パターン）の顕微鏡写真である。

[図2]比較例1の導電ペーストを用いて印刷した回路パターン（導電パターン）の顕微鏡写真である。

[図3]比較例3の導電ペーストを用いて印刷した回路パターン（導電パターン）の顕微鏡写真である。

発明を実施するための形態

[0027] 以下、本発明の一実施形態に係る導電ペーストおよびそれを用いた導電パターンについて、図面を参照しながら詳細に説明する。なお、本発明は、以下に示される実施例に限定されるものではなく、本発明の技術的思想を逸脱しない範囲内で各種の変更が可能である。

実施例

[0028] 1. 導電ペーストの作製

本発明の一実施形態に係る導電ペーストおよび比較例の導電ペーストは、以下の原料および条件にて製作した（「表1」参照）。

[実施例1]

銀被覆銅フレークとして、体積平均粒子径（ D_{50} ）が $6\mu\text{m}$ のトーヤルテックフィラー（登録商標）／TFM-C05F（東洋アルミニウム社製）を65.1g、銀被覆シリカ粉として、体積平均粒子径（ D_{50} ）が $2\mu\text{m}$ のトーヤルテ

ックフィラー（登録商標）／TFM - S02P（東洋アルミニウム社製）を0. 2 9 g、バインダー樹脂として、エリーテル（登録商標）／UE - 3210（ユニチカ社製）を1 2. 0 g、硬化剤として、ブロックイソシアネート（製品名：799 2、Baxenden社製）を1. 7 g、および溶剤として、エチルカルビトールアセテートとイソホロンを重量比1 6：9で混合した混合溶剤2 4. 9 gを配合し、そしてディスパーおよび3本ロールを用いて混練して実施例1の導電ペーストを製作した。

[0029] [実施例2]

銀被覆シリカ粉として、体積平均粒子径（ D_{50} ）が2 μ mのトーヤルテックフィラー（登録商標）／TFM - S02P（東洋アルミニウム社製）を0. 5 7 g配合したこと以外は、実施例1と同じ条件にて実施例2の導電ペーストを製作した。

[0030] [実施例3]

銀被覆シリカ粉として、体積平均粒子径（ D_{50} ）が2 μ mのトーヤルテックフィラー（登録商標）／TFM - S02P（東洋アルミニウム社製）を1. 2 g配合したこと以外は、実施例1と同じ条件にて実施例3の導電ペーストを製作した。

[0031] [実施例4]

銀被覆シリカ粉として、体積平均粒子径（ D_{50} ）が2 μ mのトーヤルテックフィラー（登録商標）／TFM - S02P（東洋アルミニウム社製）を2. 3 g配合したこと以外は、実施例1と同じ条件にて実施例4の導電ペーストを製作した。

[0032] [実施例5]

銀被覆銅フレークとして、体積平均粒子径（ D_{50} ）が6 μ mのトーヤルテックフィラー（登録商標）／TFM - C05F（東洋アルミニウム社製）を2 5. 9 g、銀被覆シリカ粉として、体積平均粒子径（ D_{50} ）が2 μ mのトーヤルテックフィラー（登録商標）／TFM - S02P（東洋アルミニウム社製）を3 2. 3 g配合したこと以外は、実施例1と同じ条件にて実施例5の導電ペーストを

製作した。

[0033] [比較例 1]

銀被覆シリカ粉を配合しなかったこと以外は、実施例 1 と同じ条件にて比較例 1 の導電ペーストを製作した。

[0034] [比較例 2]

銀被覆銅フレークを配合せず、銀被覆シリカ粉として、体積平均粒子径 (D_{50}) が $2\ \mu\text{m}$ のトーヤルテックフィラー (登録商標) /TFM-S02P (東洋アルミニウム社製) を $47.9\ \text{g}$ 配合したこと以外は、実施例 1 と同じ条件にて比較例 2 の導電ペーストを製作した。

[0035] [比較例 3]

銀被覆銅フレークを配合せず、銀被覆シリカ粉として、体積平均粒子径 (D_{50}) が $2\ \mu\text{m}$ のトーヤルテックフィラー (登録商標) /TFM-S02P (東洋アルミニウム社製) を $7.9\ \text{g}$ 配合したこと以外は、実施例 1 と同じ条件にて比較例 3 の導電ペーストを製作した。

[0036] [比較例 4]

銀被覆シリカ粉の代替として、体積平均粒子径 (D_{50}) が $5.7\ \mu\text{m}$ の球状銀粉 (製品名: HXR-Ag、日本アトマイズ加工株式会社製) を $2.3\ \text{g}$ 配合したこと以外は、実施例 1 と同じ条件にて比較例 4 の導電ペーストを製作した。

[0037] [比較例 5]

銀被覆銅フレークの代替として、体積平均粒子径 (D_{50}) が $4.8\ \mu\text{m}$ の銀フレーク (製品名: TCG-1は株式会社徳力化学研究所社製) を $65.1\ \text{g}$ 、銀被覆シリカ粉として、体積平均粒子径 (D_{50}) が $2\ \mu\text{m}$ のトーヤルテックフィラー (登録商標) /TFM-S02P (東洋アルミニウム社製) を $2.3\ \text{g}$ 配合したこと以外は、実施例 1 と同じ条件にて比較例 5 の導電ペーストを製作した。

[0038] [比較例 6]

銀被覆銅フレークの代替として、体積平均粒子径 (D_{50}) が $4.8\ \mu\text{m}$ の

銀フレーク（製品名：TCG-1は株式会社徳力化学研究所社製）を65.1g配合し、銀被覆シリカ粉を配合しなかったこと以外は、実施例1と同じ条件にて比較例6の導電ペーストを製作した。

[0039] 実施例1～5および比較例1～6の導電ペーストに配合した各成分の添加量（g）および導電ペーストの全不揮発分に対する各成分の配合比率（Vol%）を表1に示す。

[表1]

	不揮発分										揮発分	
	銀メッキ銅フレーク／銀フレーク		銀メッキシリカ粉／銀粉		硬化剤		バインダー樹脂		不揮発分合計 (vol%)		混合溶剤	添加量 (g)
	種類	添加量		種類	添加量		添加量		(vol%)	(g)	(vol%)	(g)
		(g)	(vol%)		(g)	(vol%)	(g)	(vol%)				
実施例1	銀メッキ銅フレーク (TFM-C05F)	65.1	40.0	銀メッキシリカ粉 (TFM-S02P)	0.29	0.6	1.7	6.6	12.0	52.9	100.0	24.9
実施例2	銀メッキ銅フレーク (TFM-C05F)	65.1	39.7	銀メッキシリカ粉 (TFM-S02P)	0.57	1.1	1.7	6.5	12.0	52.6	100.0	24.9
実施例3	銀メッキ銅フレーク (TFM-C05F)	65.1	39.3	銀メッキシリカ粉 (TFM-S02P)	1.2	2.2	1.7	6.5	12.0	52.0	100.0	24.9
実施例4	銀メッキ銅フレーク (TFM-C05F)	65.1	38.4	銀メッキシリカ粉 (TFM-S02P)	2.3	4.3	1.7	6.3	12.0	50.9	100.0	24.9
実施例5	銀メッキ銅フレーク (TFM-C05F)	25.9	11.4	銀メッキシリカ粉 (TFM-S02P)	32.3	45.7	1.7	4.7	12.0	38.1	100.0	24.9
比較例1	銀メッキ銅フレーク (TFM-C05F)	65.1	40.2	—	—	—	1.7	6.6	12.0	53.2	100.0	24.9
比較例2	—	—	—	銀メッキシリカ粉 (TFM-S02P)	47.9	61.3	1.7	4.3	12.0	34.5	100.0	24.9
比較例3	—	—	—	銀メッキシリカ粉 (TFM-S02P)	7.9	20.6	1.7	8.8	12.0	70.6	100.0	24.9
比較例4	銀メッキ銅フレーク (TFM-C05F)	65.1	39.7	銀粉 (HXR-Ag)	2.3	1.2	1.7	6.5	12.0	52.6	100.0	24.9
比較例5	銀フレーク (TCG-1)	65.1	35.1	銀メッキシリカ粉 (TFM-S02P)	2.3	4.6	1.7	6.7	12.0	53.7	100.0	24.9
比較例6	銀フレーク (TCG-1)	65.1	36.7	—	—	—	1.7	7.0	12.0	56.3	100.0	24.9

[0040] 2. 回路パターン（導電パターン）の作製

実施例 1 ～ 5 および比較例 1 ～ 6 の導電ペーストを用いて、材質がステンレス製、スクリーンメッシュ数 325 メッシュ、乳剤厚み 10 μm の線幅 100 μm 、各線の間隔 100 μm の回路パターンで作製されたスクリーン版を用いてスクリーン印刷機（製品名：DP-320型スクリーン印刷機、ニューロング精密工業株式会社製）により、PET樹脂シート上に印刷した。続いて、回路パターンが印刷されたシートを、150℃で30分間乾燥させて評価用回路パターンを作製した。

[0041] 3. 導電ペーストおよび回路パターンの評価

(1) 粘度

導電ペーストの作業性および滲み性との関係を調べるため、実施例 1 ～ 5 および比較例 1 ～ 6 の導電ペーストの粘度を、B型粘度計（型番：DV2THBCJ0、ブルックフィールド社製）にて温度 25℃、回転数 0.5 rpm の条件で測定した。その結果を表 2 に示す。

[0042] (2) 線幅のバラつき

実施例 1 ～ 5 および比較例 1 ～ 6 の導電ペーストを用いて作製した上記評価用回路パターンを、検査用顕微鏡（製品名：ECLIPSE L200、ニコン社製）を用いて、倍率 50 倍にて観察し、画像を撮影した。続いて、得られた画像を画像解析ソフト（製品名：Winroof 2018、三谷商事株式会社製）を用いて二値化処理を行った。二値化された画像から 1000 箇所の線幅を測定し、線幅のバラつきの指標となる 3σ の値を求めた。 3σ は標準偏差 (σ) の 3 倍の区間を意味しており、正規分布であれば平均値 $\pm 3\sigma$ 範囲に約 99.7% のサンプルが収まる。

[0043] 回路パターンの線幅のバラつきは、その 3σ の値が小さいほど好ましいが、 3σ の値が 50 μm を超えると、通電時等において隣り合う線同士が短絡する可能性があることから「×」（不良）と評価し、50 μm 以下である場合を「○」（良）と評価した。また、回路パターン形成当初から隣り合う線同士の一部において短絡（接触）が観察される場合は、 3σ の値に抛らず「×

」(不良)と評価した。以上の結果を表2に示す。

[0044] なお、上述の各評価用回路パターンのうち、実施例4の導電ペーストを用いて作製した回路パターンの顕微鏡写真を図1に、比較例1の導電ペーストを用いて作製した回路パターンの顕微鏡写真を図2に、そして比較例3の導電ペーストを用いて作製した回路パターンの顕微鏡写真を図3に示した。

[0045] (3) 耐マイグレーション性

回路パターンの耐マイグレーション性は、上術の各評価用回路パターンを85℃、湿度85%、印加電圧50Vの条件で保持し、短絡が発生するまでの時間を測定することにより評価した。回路パターンの短絡の有無は、マイグレーションテスター(製品名: MODEL MIG-87B、IMV株式会社製)を用いて確認した。

[0046] 耐マイグレーション性は、回路パターンが短絡するまでの時間が長いほど耐マイグレーション性に優れていることを示し、本実施形態においては、短絡が発生するまでの時間が800時間以上である場合を「○」(良)と評価し、800時間未満である場合を「×」(不良)と評価した。以上の結果を表2に示す。

[0047] (4) 比抵抗値

回路パターンの比抵抗値($\Omega \cdot \text{cm}$)は、材質がポリエステル樹脂、スクリーンメッシュ数280メッシュ、乳剤厚み9ミクロンで4.8cm×4.8cmの四角形状で作製した評価用スクリーン版を用い、導電ペーストをPETフィルム上に印刷し、150℃にて30分乾燥させたものについて塗膜を形成した。なお、塗膜の厚みはデジマチック標準外側マイクロメータ(商品名: IP65 COOLANT PROOF Micrometer、株式会社ミットヨ社製)で測定することによって確認した。4探針式表面抵抗測定器(商品名: ロレスタGP、株式会社三菱アナリテック製)を用いて測定することにより確認した。各評価用回路パターンにおいて、それぞれ任意の5点を測定し、その平均値を比抵抗値とした。具体的には、印刷物の寸法、印刷物の平均厚み、測定点の座標を上記4探針式表面抵抗測定器にデータ入力し、自動的に計算させる

ことにより得られる値を導電体層（回路パターン／導電パターン）の比抵抗値とした。

[0048] 比抵抗値は、その値が小さいほど導電性に優れていることを示す。印刷物の寸法とは、印刷物が有する所定形状のパターンにおける最大長さと最大幅とからなる寸法をいう。比抵抗値は小さい方が良好であることを示し、 $2.0 \times 10^{-4} \Omega \cdot \text{cm}$ 以下を示した場合を「○」（良）であると評価し、逆に $2.0 \times 10^{-4} \Omega \cdot \text{cm}$ より大きい場合を「×」（不良）と評価した。以上の結果を表2に示す。

[0049] 各評価用回路パターンの総合評価は、上述した「線幅のバラつき」、「耐マイグレーション性」および「比抵抗値」の評価において、いずれも「○」を獲得したもののみを「○」（良）と評価し、各評価の中で1つでも「×」があるものは総合評価においても「×」（不良）と評価した。

[0050] 実施例1～5および比較例1～6の導電ペーストおよびそれらを用いて作製した回路パターン（導電パターン）の評価を表2に示す。

[表2]

	導電ペースト	回路パターン（導電パターン）						総合評価
	粘度 (Pa・s)	線幅バラつき（3σ）		比抵抗値		耐マイグレーション性		
		測定値 (μ)	評価	測定値 (Ω・cm)	評価	測定値 (時間)	評価	
実施例1	34.8	45	○	1.3.E-04	○	1000	○	○
実施例2	36.5	41.5	○	1.3.E-04	○	1000	○	○
実施例3	40.6	28.3	○	1.4.E-04	○	1000	○	○
実施例4	46.4	41.3	○	1.4.E-04	○	1000	○	○
実施例5	67.9	22.6	○	1.3.E-04	○	800	○	○
比較例1	33.9	80.2	×	1.3.E-04	○	1000	○	×
比較例2	55.5	短絡により測定不可	×	7.0.E-04	×	800	○	×
比較例3	29	短絡により測定不可	×	1.0.E+02	×	900	○	×
比較例4	36.5	68.4	×	1.3.E-04	○	10	×	×
比較例5	77.9	57.7	×	3.0.E-04	×	500	×	×
比較例6	77.9	28.7	○	9.3.E-04	×	10	×	×

[0051] 4. 考察

表2より、実施例1～5の導電ペーストと比較例1～6の導電ペーストとを比較すると、本発明の導電ペーストは、銀被覆銅フレークをベースとして

、これに銀被覆シリカ粉を添加することにより、印刷された回路パターン（導電パターン）の「線幅のバラつき」、「耐マイグレーション性」および「比抵抗値」のいずれの評価においても良好な結果を得ることができ、その結果、線幅のバラつきが少なく、高い精度で導電パターンの印刷が可能であり、また印刷された導電パターンにおいても、電気伝導性および熱伝導性が高く、高い耐マイグレーション性を有しており、そして $30\text{ Pa}\cdot\text{s}$ 以上 $70\text{ Pa}\cdot\text{s}$ 以下の粘度を有することにより優れた作業性を備えていることが判った。

[0052] 特に実施例1～5の導電ペーストと比較例1～3の導電ペーストとの比較により、銀被覆銅フレークと銀被覆シリカ粉の体積比が、好ましくは99：1から15：85の範囲、より好ましくは99：1から20：80の範囲にあると、印刷された回路パターンにおいて、線幅のバラつきが小さく、優れた耐マイグレーション性および導電性を得ることができ、さらに実施例1～4の導電ペーストのように、銀被覆銅フレークと銀被覆シリカ粉の体積比が99：1から90：10の範囲であると、より優れた耐マイグレーション性を得られることが判った。

[0053] また、実施例1～5の導電ペーストは、銀被覆銅フレークの配合量を、導電ペーストの全不揮発分に対して10体積%以上40体積%以下とすることによって、印刷された回路パターンにおいて、線幅のバラつきが小さく、優れた耐マイグレーション性および導電性を得ることができ、比抵抗値を低く抑えながら、適度の粘度や流動性を有することにより作業性の向上を図ることができる。さらに実施例1～4の導電ペーストのように、銀被覆銅フレークの配合量を、導電ペーストの全不揮発分に対して30体積%以上40体積%以下とすれば、より優れた耐マイグレーション性を得られることが判った。

[0054] また、実施例1～5の導電ペーストにおいて、スクリーン印刷のような各種印刷法に適した作業性や印刷性を実現させるために樹脂バインダーを、導電ペーストの全不揮発分に対して30体積%以上60体積%以下の比率で配

合することが有効であることが判った。

[0055] 実施例 1 ～ 5 の導電ペーストは、銀被覆銅フレークの体積平均粒子径 (D_{50}) は、好ましくは $1.0 \mu\text{m}$ 以上 $50 \mu\text{m}$ 以下、より好ましくは $2.0 \mu\text{m}$ 以上 $20 \mu\text{m}$ 以下であると、印刷された回路パターンにおいて線幅のバラつきが少なく、回路パターンを描画する際細線への対応が極めて容易となることが判った。

[0056] また、実施例 1 ～ 5 の導電ペーストは、銀被覆シリカ粉の体積平均粒子径 (D_{50}) は、好ましくは $0.050 \mu\text{m}$ 以上 $50.0 \mu\text{m}$ 以下、より好ましくは $0.1 \mu\text{m}$ 以上 $5.0 \mu\text{m}$ 以下であると、高い充填率を達成することにより比抵抗値を低く抑えながら、印刷された回路パターンにおいても線幅のバラつきが少なくなることが判った。

[0057] また、図 1 ～ 3 より、本発明の導電ペーストを用いて複数のラインを $100 \mu\text{m}$ 程度の間隔を空けて印刷した回路パターン（導電パターン）は、線幅のバラつきが小さいために隣り合うライン同士が短絡（接触）することがなく、また、各ラインの電気伝導性にも優れた回路パターンを得られることが判った。

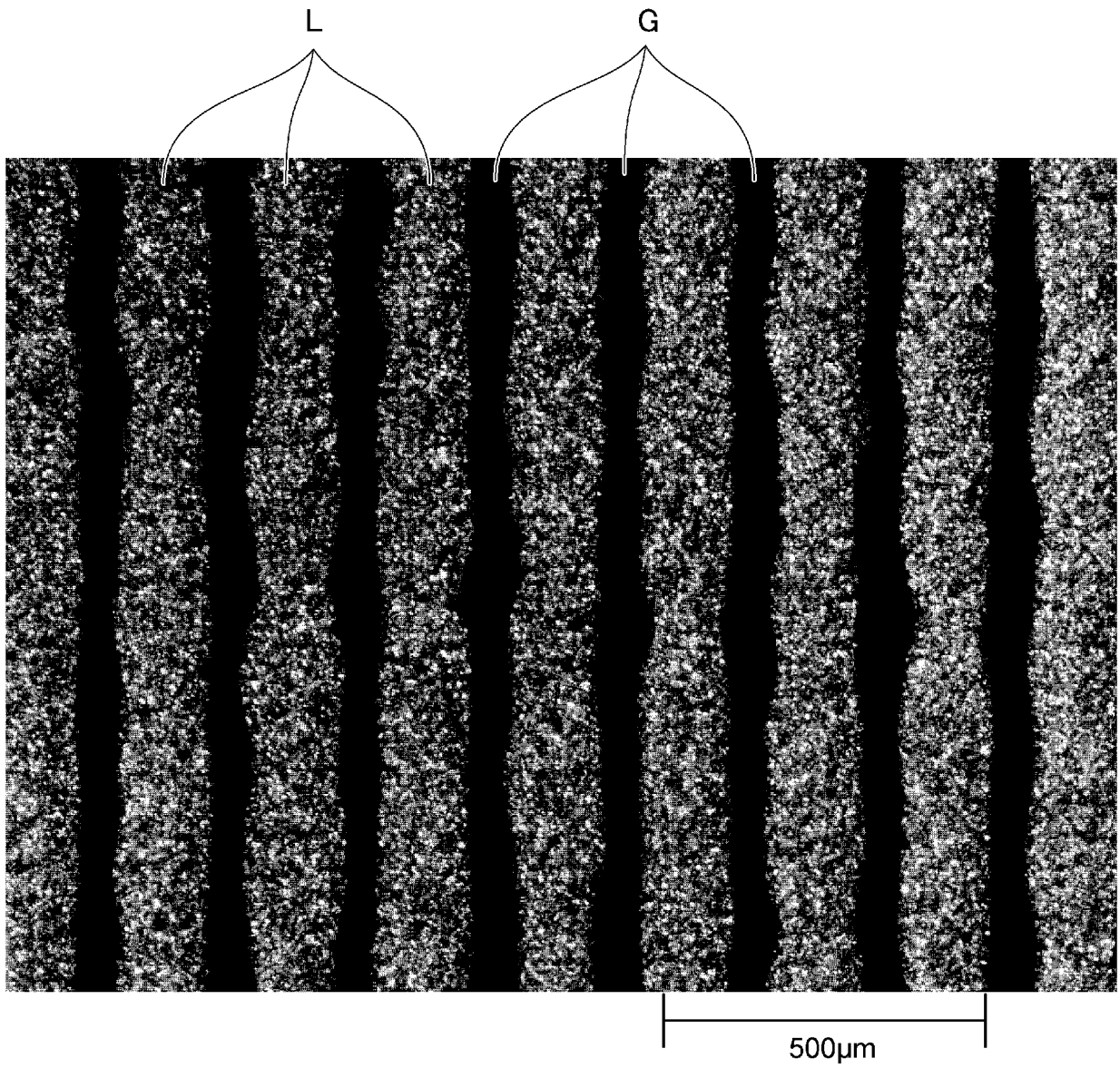
符号の説明

[0058] L・・・印刷線
G・・・隙間（PET樹脂シート）
S・・・短絡部分（接触部分）

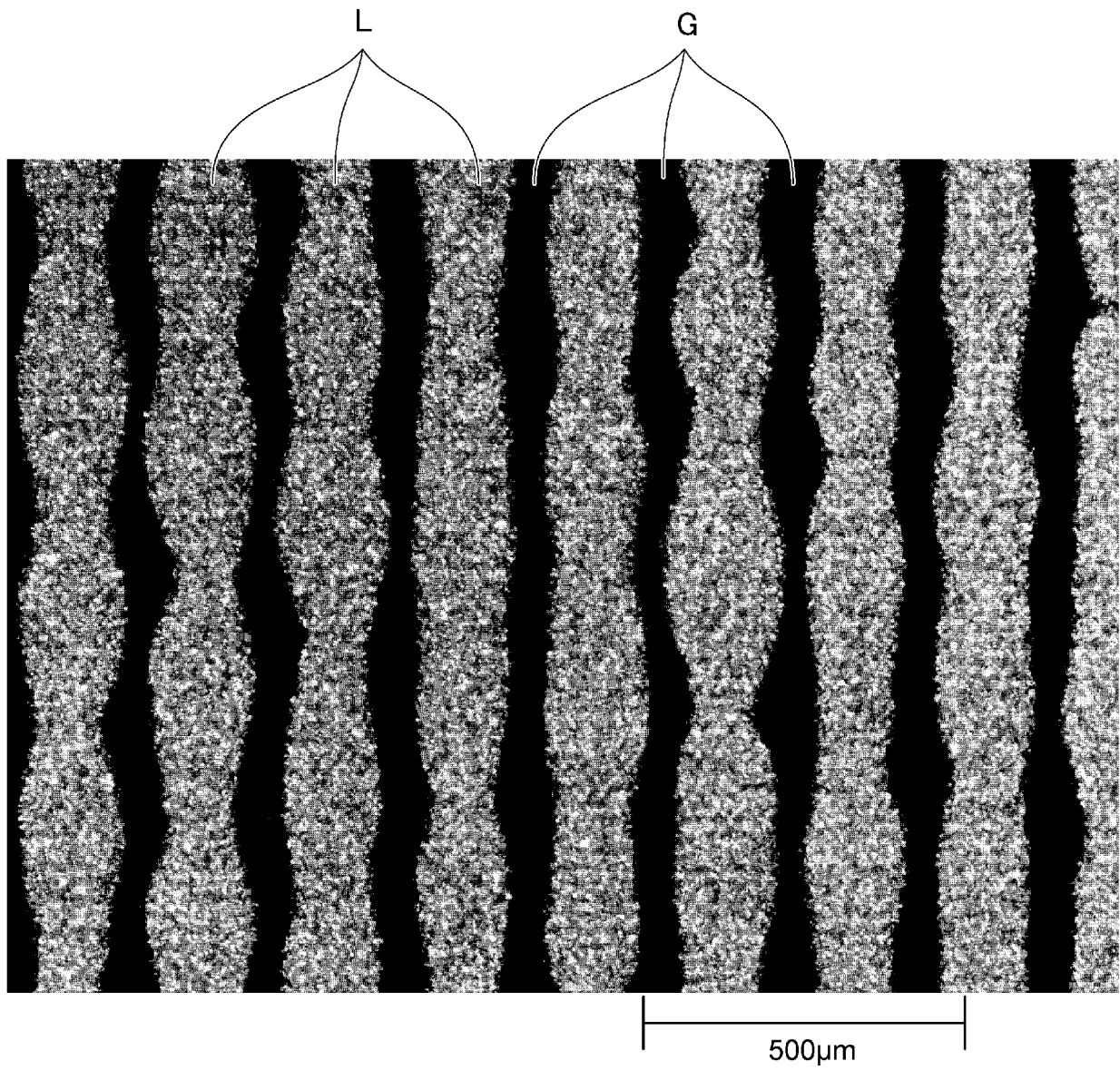
請求の範囲

- [請求項1] 銀被覆銅フレークと、銀被覆シリカ粉とを含んでいることを特徴とする導電ペースト。
- [請求項2] 前記銀被覆銅フレークと前記銀被覆シリカ粉の配合比が、体積比で99：1から15：85の範囲内であることを特徴とする請求項1に記載の導電ペースト。
- [請求項3] 前記銀被覆銅フレークの平均粒子径が2.0 μm 以上20.0 μm 以下であり、そして前記銀被覆シリカ粉の平均粒子径が0.1 μm 以上5.0 μm 以下であることを特徴とする請求項1または2に記載の導電ペースト。
- [請求項4] 導電ペーストの全不揮発分に対して、30体積%以上60体積%以下の配合量で樹脂バインダーをさらに含んでいることを特徴とする請求項1から3のいずれか1項に記載の導電ペースト。
- [請求項5] 請求項1から4のいずれか1項に記載の導電ペーストを用いて形成された導電パターン。

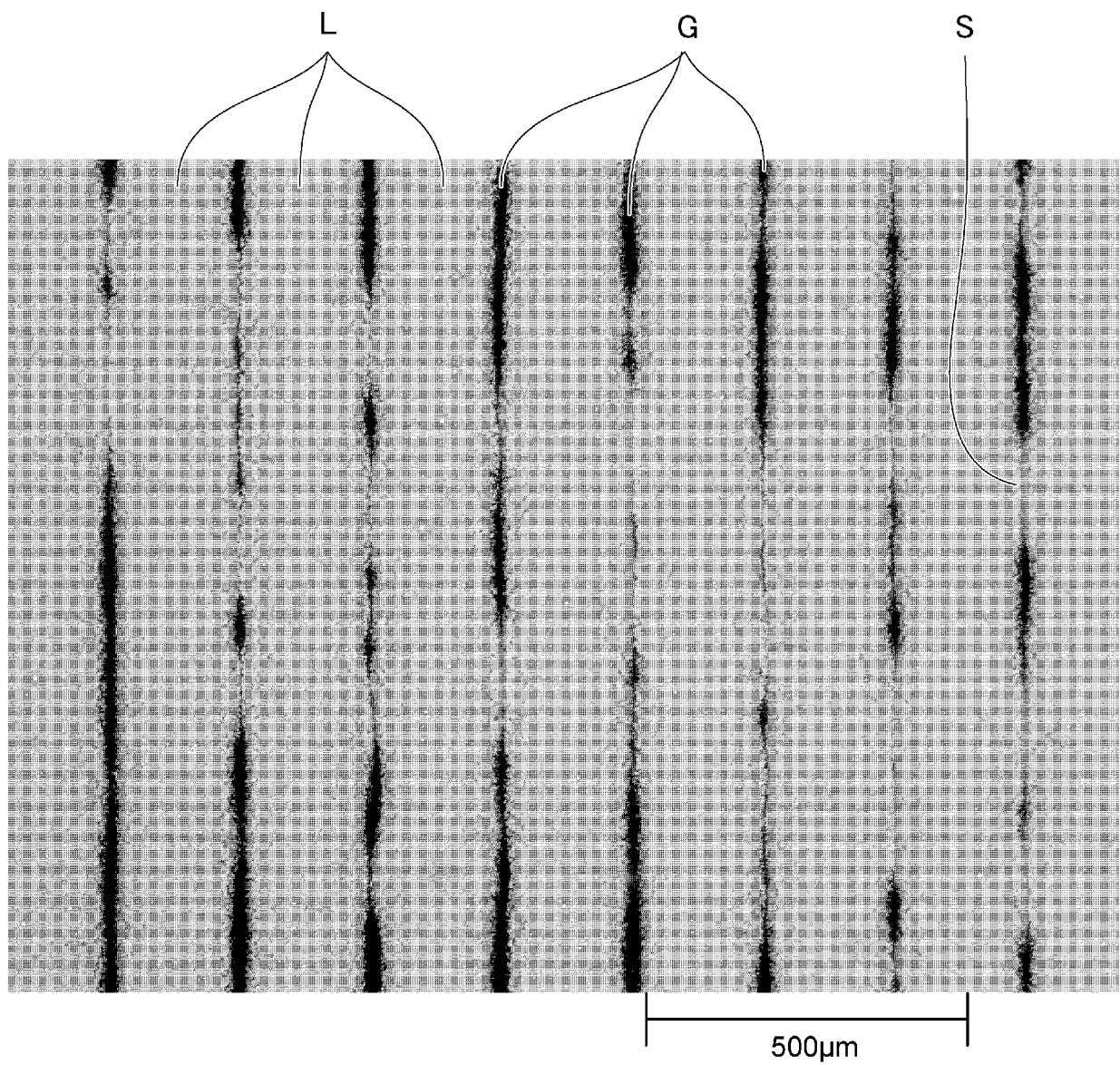
[図1]



[図2]



[図3]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2021/005749

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int. Cl. H01B1/00 (2006.01) i, H01B1/22 (2006.01) i, H01B5/14 (2006.01) i
FI: H01B1/22 A, H01B1/00 C, H01B5/14 B, H01B5/14 A

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. H01B1/00, H01B1/22, H01B5/14

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 1971-2021

Registered utility model specifications of Japan 1996-2021

Published registered utility model applications of Japan 1994-2021

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2015-026519 A (KYOCERA CHEMICAL CORP.) 05	1-4
Y	February 2015, claims, paragraphs [0019], [0026]-[0028]	5
Y	JP 2012-079457 A (TAIYO HOLDINGS CO., LTD.) 19 April 2012, claims, paragraph [0021]	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
10.03.2021

Date of mailing of the international search report
23.03.2021

Name and mailing address of the ISA/
Japan Patent Office
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

Information on patent family members

PCT/JP2021/005749

Form PCT/ISA/210 (patent family annex) (January 2015)

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） H01B 1/00(2006.01)i; H01B 1/22(2006.01)i; H01B 5/14(2006.01)i FI: H01B1/22 A; H01B1/00 C; H01B5/14 B; H01B5/14 A														
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）） H01B1/00; H01B1/22; H01B5/14														
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 <table border="0"> <tr> <td>日本国実用新案公報</td> <td>1922 - 1996年</td> </tr> <tr> <td>日本国公開実用新案公報</td> <td>1971 - 2021年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996 - 2021年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994 - 2021年</td> </tr> </table>			日本国実用新案公報	1922 - 1996年	日本国公開実用新案公報	1971 - 2021年	日本国実用新案登録公報	1996 - 2021年	日本国登録実用新案公報	1994 - 2021年				
日本国実用新案公報	1922 - 1996年													
日本国公開実用新案公報	1971 - 2021年													
日本国実用新案登録公報	1996 - 2021年													
日本国登録実用新案公報	1994 - 2021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）														
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	JP 2015-026519 A（京セラケミカル株式会社）05.02.2015（2015 - 02 - 05） 特許請求の範囲、段落【0019】、【0026】乃至【0028】	1-4												
Y		5												
Y	JP 2012-079457 A（太陽ホールディングス株式会社）19.04.2012（2012 - 04 - 19） 特許請求の範囲、段落【0021】	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。														
<table border="0"> <tr> <td>* 引用文献のカテゴリー</td> <td>“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抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの</td> </tr> <tr> <td>“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</td> <td>“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</td> </tr> <tr> <td>“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</td> <td>“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</td> </tr> <tr> <td>“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）</td> <td>“&” 同一パテントファミリー文献</td> </tr> <tr> <td>“O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献</td> <td></td> </tr> <tr> <td>“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</td> <td></td> </tr> </table>			* 引用文献のカテゴリー	“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抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの	“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	“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	“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	“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	“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）	“&” 同一パテントファミリー文献	“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	
* 引用文献のカテゴリー	“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抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの													
“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	“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													
“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	“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													
“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）	“&” 同一パテントファミリー文献													
“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														
国際調査を完了した日 10.03.2021	国際調査報告の発送日 23.03.2021													
名称及びあて先 日本国特許庁(ISA/JP) 〒100-8915 日本国 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	権限のある職員（特許庁審査官） 和田 財太 5G 9459 電話番号 03-3581-1101 内線 3526													

国際調査報告
パテントファミリーに関する情報

国際出願番号

PCT/JP2021/005749

引用文献			公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP	2015-026519	A	05.02.2015	(ファミリーなし)	
JP	2012-079457	A	19.04.2012	(ファミリーなし)	