

(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
2010年9月10日(10.09.2010)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2010/100893 A1

- (51) 国際特許分類:
H01B 1/22 (2006.01) H01L 21/288 (2006.01)
H01B 1/00 (2006.01) H01L 21/3205 (2006.01)
H01B 5/14 (2006.01) H01L 23/52 (2006.01)
H01L 21/28 (2006.01) H05K 1/09 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2010/001400
- (22) 国際出願日: 2010年3月2日(02.03.2010)
- (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 2009-053811 2009年3月6日(06.03.2009) JP
- (71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): 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; および
- (75) 発明者/出願人(米国についてのみ): 頼高潮(LAI, Gaochao) [CN/JP]; 〒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). 橋詰良樹(HASHIZUME, Yoshiki) [JP/JP]; 〒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). 川島桂(KAWASHIMA, Katsura) [JP/JP]; 〒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). 小池和徳(KOIKE, Kazunori) [JP/JP]; 〒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: 甲田一幸(KODA, Kazuyuki); 〒5810038 大阪府八尾市若林町1丁目84番地の2 八尾南ガーデンテラス208-B号 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, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PE, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, 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, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (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, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- 添付公開書類:
— 国際調査報告(条約第21条(3))
— 請求の範囲の補正の期限前の公開であり、補正を受理した際には再公開される。(規則48.2(h))

(54) Title: ELECTRICALLY CONDUCTIVE PASTE COMPOSITION AND ELECTRICALLY CONDUCTIVE FILM FORMED BY USING THE SAME

(54) 発明の名称: 導電性ペースト組成物およびそれを用いて形成された導電性膜

(57) Abstract: Provided are an electrically conductive paste composition for use in a plurality of types of substrates and electronic devices, whereby an electrically conductive film for electrodes, wiring, or the like, that has excellent electric conductivity, surface smoothness, and adherence to substrates can be inexpensively and easily formed, and an electrically conductive film formed by using the same. The electrically conductive paste composition includes flaky aluminum particles as an electrically conductive powder, wherein the flaky aluminum particles have an average thickness of 0.8 μm or less, and the ratio of the oxygen content per unit surface area in the flaky aluminum particles is 15 mg/m² or less.

(57) 要約: 導電性、表面平滑性、および、基材との密着性が良好な電極、配線等の導電性膜を各種基板上や電子デバイスにおいて容易かつ安価に形成することが可能な導電性ペースト組成物およびそれを用いて形成された導電性膜を提供する。導電性ペースト組成物は、導電性粉末として薄片状アルミニウム粒子を含み、この薄片状アルミニウム粒子の平均厚みが0.8 μm以下であり、この薄片状アルミニウム粒子の単位表面積に対する含有酸素量の比率が15 mg/m²以下である。



WO 2010/100893 A1

明 細 書

発明の名称：

導電性ペースト組成物およびそれを用いて形成された導電性膜

技術分野

[0001] 本発明は、一般的には導電性ペースト組成物およびそれを用いて形成された導電性膜に関し、特定的には、電子デバイスの電極または配線を形成するために用いるのに適した導電性ペースト組成物およびそれを用いて形成された導電性膜に関する。

背景技術

[0002] アルミニウムは軽量で良好な導電性を示すため、半導体デバイスや太陽電池、電子ディスプレイ等の多くの電子デバイスに電極や配線を形成するための材料として使用されている。従来から、アルミニウムを含む導電性膜は、PVD法（スパッタリング法、真空蒸着法など）やCVD法などの真空プロセス法で形成され、得られたアルミニウム含有導電性膜を、フォトリソグラフィ技術を用いたエッチング法により選択的に除去することによって、アルミニウムを含む電極または配線のパターンを形成することが一般的であった。これらの方法は、高価な真空装置を必要とするため、エネルギーを多量に消費するだけでなく、大面積の基板上に均一に電極または配線を形成することが困難である。このため、歩留まりが悪く、製造コストが高いという問題があった。また、真空プロセス法によれば、平面状でない異形状の表面の基板上に導電性膜を形成することと、 $1\mu\text{m}$ 以上の膜厚の厚い導電性膜を形成することが困難であった。

[0003] 近年、アルミニウム粒子をバインダー中に分散した導電性ペーストが開発されている。この導電性ペーストをスクリーン印刷法などでパターン印刷し、焼成することによりアルミニウムを含む電極または配線のパターンを形成する方法が提案されている。この方法は、アルミニウム含有導電性ペーストを塗布して直接パターン印刷することによって電極または配線のパターンを

形成する方法であるため、製造コストが安価である。しかし、得られたアルミニウム含有膜は、導電性が低いとともに、基板との密着性や膜の表面平滑性も悪く、このようなアルミニウム含有膜を用いて微細なパターンを形成することは技術的に困難であった。

[0004] 上記の塗布法によるアルミニウム含有膜の性能を改良するため、アルミニウム含有導電性ペーストに対して種々の提案がなされている。

[0005] 例えば、特開 2008-108716 号公報（以下、特許文献 1 という）には、60～90 重量部のアルミニウム粉末と 10～40 重量部の銀粉末との混合粉末で導電性ペーストを作製し、この導電性ペーストを低温で焼成することにより緻密な焼成膜を形成して、アルミニウム含有膜の性能を向上させることが開示されている。

[0006] また、特開平 5-298917 号公報（以下、特許文献 2 という）には、アルミニウムの酸化抵抗性を向上させ、空気雰囲気下で焼成しても優れた導電性を発揮する導電性アルミニウムペースト組成物を得るために、アルミニウム粉末とガラス粉末からなる混合物に、炭素、ゲルマニウム、スズ、水素化金属化合物及びリン化金属化合物から選ばれた少なくとも 1 種の粉末を添加することが開示されている。

[0007] さらに、特開 2005-1193 号公報（以下、特許文献 3 という）には、表面導電性に優れた導電性積層部材を得るために、基材表面に、アンダーコート層、金属薄膜層を順次形成し、さらにその上層に、樹脂成分と、硬化剤成分と、鱗片状アルミニウム粉末や酸化スズ粉末及び酸化インジウム粉末などの金属酸化物粉末成分からなる塗料組成を有するトップコート層を形成することが開示されている。

先行技術文献

特許文献

[0008] 特許文献 1：特開 2008-108716 号公報

特許文献 2：特開平 5-298917 号公報

特許文献 3：特開 2005-1193 号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

- [0009] しかしながら、特許文献 1 に開示されたアルミニウム粉末と銀粉末との混合粉末を含む導電性ペーストを焼成すると、少量の銀がアルミニウム中に混入するために、得られた導電性膜のシート抵抗値が増大し、すなわち、導電性膜の導電性が低下するという問題があった。
- [0010] また、特許文献 2 に開示された導電性アルミニウムペースト組成物では、ゲルマニウム、スズ等の添加物は、焼成効果をもたらすが、焼成後に添加成分がアルミニウム中に残留するために、得られた導電性膜のシート抵抗値が増大し、すなわち、導電性膜の導電性が低下するという問題があった。
- [0011] さらに、特許文献 3 に開示された導電性積層部材では、酸化スズ、酸化インジウム等の添加物は、焼成効果をもたらすが、焼成後に添加成分がアルミニウム中に不純物として残留するために、導電性積層部材のシート抵抗値が増大し、すなわち、導電性積層部材の導電性が低下するという問題があった。
- [0012] なお、不純物の残留により、形成された導電性膜の表面平滑性や基材との密着性などの物理特性も低下する恐れがあった。
- [0013] そこで、この発明の目的は、導電性、表面平滑性、および、基材との密着性が良好な電極、配線等の導電性膜を各種基板上や電子デバイスにおいて容易かつ安価に形成することが可能な導電性ペースト組成物およびそれを用いて形成された導電性膜を提供することである。

課題を解決するための手段

- [0014] 本発明者らは、従来技術の問題点を解決するために鋭意研究を重ねた結果、特定の物性値を有するアルミニウム粒子、特にアルミニウム粒子の形状と表面状態、例えば酸素含有量、に注目し、ペースト組成物中のアルミニウム粒子として、特定の形状と酸素含有量のアルミニウム粒子を使用し、そして、当該アルミニウム粒子を含有した導電性ペースト組成物を使用して導電性膜を形成することにより、上記の目的を達成できることを見出した。この知

見に基づいて、本発明に従った導電性ペースト組成物およびそれを用いて形成された導電性膜は、次のような特徴を備えている。

- [0015] この発明に従った導電性ペースト組成物は、導電性粉末として薄片状アルミニウム粒子を含み、この薄片状アルミニウム粒子の平均厚みが $0.8\mu\text{m}$ 以下であり、この薄片状アルミニウム粒子の単位表面積に対する含有酸素量の比率が $15\text{mg}/\text{m}^2$ 以下である。
- [0016] この発明の導電性ペースト組成物において、薄片状アルミニウム粒子の平均厚みに対する平均粒子径の比率である平均アスペクト比が30以上500以下であることが好ましい。
- [0017] また、この発明の導電性ペースト組成物において、薄片状アルミニウム粒子が有機質膜で被覆されているのが好ましい。
- [0018] この場合、この有機質膜が、脂肪酸、脂肪酸アミン、脂肪族アルコール、エステル化合物および樹脂からなる群より選ばれた少なくとも1種を含むことが好ましい。
- [0019] この発明の導電性ペースト組成物は、有機質ビヒクル、ガラスフリットおよび金属アルコキシドからなる群より選ばれた少なくとも1種をさらに含むことが好ましい。
- [0020] この発明に従った導電性膜は、上述のいずれかの特徴を有する導電性ペースト組成物を用いて形成された導電性膜であって、平均表面粗度 R_a が $1\mu\text{m}$ 以下である。
- [0021] また、本発明の導電性膜は、その導電性膜のX線回折分析により得られたチャートにおいて、 Al の(200)面に対応する回折ピークに対する $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ の(400)面に対応する回折ピークのピーク強度比が、0.2以下であることが好ましい。
- [0022] さらに、本発明の導電性膜の断面観察において、導電性膜断面中の薄片状アルミニウム粒子の面積占有率が80%以上で、薄片状アルミニウム粒子の平均傾斜角度が 3° 以下であることが好ましい。

発明の効果

[0023] 以上のように、本発明によれば、ペースト組成物中の導電性粉末として、平均厚みが $0.8\text{ }\mu\text{m}$ 以下、かつ、粒子の単位表面積に対する含有酸素量の比率が $15\text{ mg}/\text{m}^2$ 以下の薄片状アルミニウム粒子を使用することにより、焼成時のアルミニウム粒子の緻密化を促進する効果を得ることができる。さらに、本発明のペースト組成物を用いて基板に導電性膜を形成すれば、導電性、表面平滑性、および、基材との密着性がともに良好な電極、配線等の導電性膜を得ることができる。

発明を実施するための形態

[0024] 本発明の導電性ペースト組成物は、導電性粉末として薄片状アルミニウム粒子を含む導電性ペースト組成物であって、薄片状アルミニウム粒子の平均厚みが $0.8\text{ }\mu\text{m}$ 以下であり、かつ、薄片状アルミニウム粒子の単位表面積に対する含有酸素量の比率が $15\text{ mg}/\text{m}^2$ 以下である。

[0025] 本発明のペースト組成物は、導電性粉末として薄片状アルミニウム粒子を使用する。従来の粒状アルミニウム粒子と比較して、薄片状アルミニウム粒子を使用することにより、粒子間の接触面積を大幅に増加させ、焼成時のアルミニウム粒子の緻密化や焼成後に得られる膜の導電性を向上させる効果がある。

[0026] <薄片状アルミニウム粒子>

薄片状アルミニウム粒子の平均厚みは $0.8\text{ }\mu\text{m}$ 以下である。好ましくは薄片状アルミニウム粒子の平均厚みは $0.6\text{ }\mu\text{m}$ 以下である。薄片状アルミニウム粒子の平均厚みの下限値は、特に限定されないが、粒子の強度や表面状態、及び製造工程での取り扱いの難しさなどを考慮すれば、 $0.01\text{ }\mu\text{m}$ である。なお、薄片状アルミニウム粒子の平均厚みは、粒子の隠蔽力と密度とにより算出することができ、粒子の原子間力顕微鏡（AFM）写真において測定することもできる。

[0027] 薄片状アルミニウム粒子の粒径は、 $1\text{ }\mu\text{m}$ 以上 $100\text{ }\mu\text{m}$ 以下であることが好ましく、より好ましくは $2\text{ }\mu\text{m}$ 以上 $20\text{ }\mu\text{m}$ 以下である。薄片状アルミニウム粒子の粒径が $1\text{ }\mu\text{m}$ を超える場合は、薄片状アルミニウム粒子の配列

が悪くなるため、薄片状アルミニウム粒子間の接触が不十分となり、良好な導電性が得られない。薄片状アルミニウム粒子の粒径が $100\mu\text{m}$ を超える場合も、薄片状アルミニウム粒子の配列が悪くなり、薄片状アルミニウム粒子間の良好な接触状態を保つことができないため、導電性が悪くなる。

[0028] また、薄片状アルミニウム粒子の平均厚みに対する平均粒子径の比率である平均アスペクト比は、30以上500以下であることが好ましく、40以上400以下であることがさらに好ましい。平均アスペクト比が30未満の場合は、アルミニウム粒子のフレーク化は不完全で、粒子間の接触が十分でないため、所定の緻密化効果が得られない恐れがある。一方、平均アスペクト比が500を超える場合は、アルミニウム粒子は過度にフレーク化したことにより、アルミニウム粒子の表面状態が悪くなり、例えば、表面酸素量が増大し、形成される膜の導電性や密着性を低下させることがある。なお、平均アスペクト比は、粒子の平均粒子径と、平均厚みとの比（平均粒子径 $[\mu\text{m}]$ ／平均厚み $[\mu\text{m}]$ ）により算出される。粒子の平均粒子径は、レーザー回折法、マイクロメッシュシーブ法、コールターカウンター法などの公知の粒度分布測定法により測定された粒度分布より体積平均を算出して求められる。

[0029] 薄片状アルミニウム粒子は、どのような方法で作製されたものであってもよいが、たとえば、プラスチックフィルムの表面に蒸着により形成されたアルミニウム薄膜をプラスチックフィルムの表面から剥離した後に破砕することにより、あるいは、従来から公知のアトマイズ法により得られるアルミニウム粒子を、有機溶媒の存在下でボールミルを用いて粉砕することによって、薄片状アルミニウム粒子を作製してもよい。

[0030] 一般的に前述の蒸着プロセスにより得られたアルミニウム粒子（薄膜）、または前述のボールミルを用いて粉砕することにより得られた薄片状アルミニウム粒子の表面には、たとえば、樹脂等の離型剤または高級脂肪酸等の粉砕助剤が付着しているが、本発明においては薄片状アルミニウム粒子の表面に離型剤や粉砕助剤が付着したものを使用してもよく、薄片状アルミニウム

粒子の表面から離型剤や粉砕助剤が除去されたものを使用してもよい。いずれの薄片状アルミニウム粒子を用いても、上述した作用効果を達成することができる。ボールミルを用いて粉砕する場合の粉砕助剤としては、たとえばオレイン酸やステアリン酸などの脂肪酸の他、脂肪族アミン、脂肪族アミド、脂肪族アルコール、エステル化合物などが挙げられる。これらは、薄片状アルミニウム粒子の表面の不必要な酸化を抑制し、形成される膜の導電性などを改善する効果を有する。

[0031] 本発明の導電性ペースト組成物において、薄片状アルミニウム粒子が有機質膜で被覆されているのが好ましい。この場合、薄片状アルミニウム粒子の表面に存在する粉砕助剤や樹脂などの有機物は、本発明の導電性ペーストの焼成工程においてもアルミニウムの酸化を抑制し、より高い導電性を実現する。有機質膜は、脂肪酸、脂肪族アミン、脂肪族アルコール、脂肪族のエステル化合物および樹脂からなる群より選ばれた少なくとも1種を含むことが好ましい。具体的には、脂肪酸としては、オレイン酸、ステアリン酸、ラウリン酸、脂肪族アミンとしては、ステアリルアミン、ラウリルアミン、脂肪族アルコールとしては、ステアリルアルコール、オレイルアルコール、脂肪族のエステル化合物としては、ステアリン酸アミド、ステアリン酸ブチル、オレイルアシッドホスフェート、2-エチルヘキシルアシッドホスフェート、樹脂としては、アクリル樹脂、ウレタン樹脂、エポキシ樹脂、ポリエステル樹脂、セルロース樹脂等が例示される。

[0032] また、薄片状アルミニウム粒子の単位表面積に対する含有酸素量の比率は、 15 mg/m^2 以下である。好ましくは、上記の含有酸素量の比率は、 12 mg/m^2 以下である。含有酸素量の比率が 15 mg/m^2 を超えると、アルミニウム粒子の緻密化が遅くなり、得られる膜の導電性が低下する恐れがある。なお、当該酸素量の比率は、後述するように不活性ガス中溶解-赤外線吸収法により測定された薄片アルミニウム粒子中の酸素含有量と、窒素吸着BET法により測定された比表面積の比（酸素含有量 $[\text{mg/g}]$ / 比表面積 $[\text{m}^2/\text{g}]$ ）により算出される。

[0033] ここで、本発明の導電性ペースト組成物中に含有される薄片状アルミニウム粒子の含有量は、5質量%以上60質量%以下であることが好ましく、さらには10質量%以上40質量%以下であることが好ましい。薄片状アルミニウム粒子の含有量が上記の範囲内であれば、各種基板への塗布性が良好になるので、焼成後に形成される膜の基板に対する密着性が良好になる。

[0034] <有機質ビヒクル>

本発明の導電性ペースト組成物中に含有される有機質ビヒクルは、各種バインダー樹脂を有機溶剤で溶解したものが用いられる。

[0035] 本発明の導電性ペースト組成物に含有される有機質ビヒクルを構成するバインダー樹脂の成分は特に限定されず、エチルセルロース系樹脂、アルキッド系樹脂、ポリエステル系樹脂、アクリル系等の樹脂を用いることができるが、本発明の導電性ペースト組成物を基板に塗布後加熱することにより、焼成温度で完全に燃焼および分解するものが好ましい。また、有機溶剤としては、イソプロピルアルコール、トルエン、グリコールエーテル系やターピネオール系などの溶剤を使用することができる。本発明の導電性ペースト組成物中の有機質ビヒクルの含有量は、40質量%以上95質量%以下であることが好ましい。有機質ビヒクルの含有量が上記の範囲内であれば、薄片状アルミニウム粒子を含む導電性ペースト組成物は、各種基板への塗布性や印刷性の点で優れる。

[0036] なお、有機質ビヒクル中のバインダー樹脂の含有量は特に限定されないが、通常、有機質ビヒクル中のバインダー樹脂の含有量が0.5質量%以上40質量%以下であることが好ましい。

[0037] <ガラスフリット>

さらに、本発明の導電性ペースト組成物はガラスフリットを含んでもよい。ガラスフリットの含有量は、0.5質量%以上5質量%以下であるのが好ましい。ガラスフリットは、焼成後において得られる膜の基板との密着性を向上させる作用があるが、ガラスフリットの含有量が5質量%を超えると、ガラスの偏析が生じ、形成される膜の導電性を低下させる恐れがある。ガラ

スフリットの平均粒子径は、本発明の効果に悪影響を与えない限り特に限定されないが、通常 $1 \sim 4 \mu\text{m}$ 程度が好ましい。

[0038] 本発明の導電性ペースト組成物に含められるガラスフリットは、特に組成や各成分の含有量が限定されず、通常、その軟化点が焼成温度以下のものを用いる。通常、ガラスフリットとして、 $\text{SiO}_2\text{-Bi}_2\text{O}_3\text{-PbO}$ 系の他に、 $\text{B}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2\text{-Bi}_2\text{O}_3$ 系、 $\text{B}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2\text{-ZnO}$ 系、 $\text{B}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2\text{-PbO}$ 系等を使用することができる。

[0039] <金属アルコキシド>

本発明の導電性ペーストは金属アルコキシドを含んでいてもよい。金属アルコキシドの具体的な例としては、テトラエトキシシラン、テトラメトキシシランなどのシリコンアルコキシド；アルミニウムイソプロポキシド、アルミニウムエトキシドなどのアルミニウムアルコキシド；テトラブトキシチタンなどのチタニウムアルコキシド；とそれらの多量体が例示される。ただし、金属アルコキシドはそれらに限定されるわけではなく、 Mg 、 Zn 、 Mn 、 Zr 、 Ce などのあらゆる金属のアルコキシドが使用され得る。金属アルコキシドは、ガラスフリットとともに本発明の導電性ペーストに含められてもよく、単独で本発明の導電性ペーストに含められてもよい。また、複数の金属アルコキシドを本発明の導電性ペーストに含められてもよい。

[0040] <その他>

また、本発明の導電性ペースト組成物は、本発明の効果を妨げないものであれば種々のものを含有することができる。たとえば、適宜公知の樹脂、粘度調整剤、表面調整剤、沈降防止剤、消泡剤などの他の構成成分と混合され、導電性ペースト組成物として調製されることができる。

[0041] <導電性ペースト組成物の製造方法>

なお、本発明の導電性ペースト組成物は、例えば、公知の攪拌機を用いて各成分を攪拌混合する方法や、ロールミル等の混練機により各成分を混練する方法などにより製造することができるが、これらに限定されるものではない。

[0042] <導電性膜の形成方法>

本発明のペースト組成物が塗布される基板の材質、形状等は特に制限はないが、基板の材質は次工程の熱処理に耐えられるものが好ましく、基板の形状は平面形状でもよく、段差または凹凸のある非平面形状でもよく、その形態は特に限定されるものではない。基板の材質の具体例としては、セラミックス質やガラス質などを挙げることができ、セラミックス質としては、アルミナ、ジルコニア、チタニアなどの金属酸化物、ガラス質としては石英ガラス、ホウ珪酸ガラス、ソーダガラスなどが使用できる。

[0043] また、本発明のペースト組成物の塗布方法は、特に限定されず、ドクターブレード法、スプレー塗装法、スクリーン印刷法、インクジェット法などを採用することができる。塗布回数は、1回でもよく、または複数回でもよく、本発明のペースト組成物を重ね塗りすることもできる。好適な塗膜の厚みは、塗布方法、固形分濃度に依存して適宜変動するが、0.1～100 μ mが好ましく、0.3～20 μ mであるのがさらに好ましい。塗膜が薄すぎると膜の平坦性が得られ難く、厚すぎると基板との密着性に劣ることがある。

[0044] 上記の塗布膜を、必要に応じて乾燥処理、脱脂処理してもよい。乾燥、脱脂の処理条件は特に限定されず、通常、乾燥温度は50℃～150℃、脱脂温度は250℃～450℃である。また、乾燥、脱脂処理時の雰囲気は一般に大気であるが、限定されるものではない。

[0045] さらに、上記の塗布膜を焼成することにより、導電性膜を形成することができる。焼成温度は、400℃～640℃とするのが好ましく、450℃～550℃とするのがさらに好ましい。また、焼成する時の雰囲気は特に限定されるものではなく、空気、非酸化性雰囲気、還元性雰囲気または真空のいずれの焼成雰囲気において塗布膜を焼成しても、良好な導電性と密着性を示す導電性膜を得ることができる。より好ましい焼成雰囲気は非酸化性雰囲気、還元性雰囲気または真空である。上記の非酸化性雰囲気は、酸素を含まない、例えばアルゴン、ヘリウム、窒素などのいずれかのガスを含む雰囲気、または、上記のガスを複数種含む混合ガス雰囲気でもよい。また、上記のガ

スに、還元性ガス、例えば水素ガスなどを混合して還元性雰囲気としてもよい。

[0046] <導電性膜>

さらに、本発明のペースト組成物を用いて形成された導電性膜の平均表面粗度 R_a は、 $1\ \mu\text{m}$ 以下であることが好ましい。

[0047] 本発明の導電性膜は、その導電性膜の X 線回折分析により得られたチャートにおいて、 Al の (200) 面に対応する回折ピークに対する $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ の (400) 面に対応する回折ピークのピーク強度比が、0.2 以下であることが好ましい。このピーク強度比が 0.2 を超えると、薄片状アルミニウム粒子の酸化によりアルミニウム粒子間の接触抵抗が大きくなるため、十分な導電性が得られない。

[0048] さらに、本発明の導電性膜の断面観察において、導電性膜断面中の薄片状アルミニウム粒子の面積占有率が 80% 以上で、薄片状アルミニウム粒子の平均傾斜角度が 3° 以下であることが好ましい。導電性膜断面中の薄片状アルミニウム粒子の面積占有率が 80% 未満である場合は十分な導電性と密着性が得られず、また、薄片状アルミニウム粒子の平均傾斜角度が 3° を超える場合にも十分な導電性と密着性が得られない。したがって、薄片状アルミニウム粒子の面積占有率を 80% 以上とし、かつ、薄片状アルミニウム粒子の平均傾斜角度を 3° 以下にすることにより、薄片状アルミニウム粒子が基板に密に接触した状態となり、良好な導電性と密着性が得られる。

実施例

[0049] 以下、本発明を実施例および比較例により具体的に説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

[0050] まず、実施例および比較例に使用する薄片状アルミニウム粒子として下記の方法により得られたものを使用した。

[0051] 実施例 1 および実施例 6 ~ 14 ならびに比較例 1 ~ 4 および比較例 6 で使用される薄片状アルミニウム粒子は、従来から公知の方法によりアトマイズ法により得られるアルミニウム粒子を、有機溶媒の存在下で粉碎助剤として

オレイン酸を使用してボールミルにより粉砕することにより得られたものである。すなわち、実施例 1 および実施例 6 ～ 14 ならびに比較例 1 ～ 4 および比較例 6 で使用される薄片状アルミニウム粒子は、薄片状アルミニウム粒子の表面に有機質膜としてオレイン酸が付着した薄片状アルミニウム粒子である。

[0052] また、実施例 2 および実施例 3 で使用される薄片状アルミニウム粒子は、上記と同様に従来から公知の方法によりアトマイズ法により得られるアルミニウム粒子を、それぞれ、粉砕助剤としてステアリン酸およびステアリルアミンを使用してボールミルにより粉砕することにより得られたものである。すなわち、実施例 2 および実施例 3 で使用される薄片状アルミニウム粒子は、薄片状アルミニウム粒子の表面に有機質膜として、それぞれ、ステアリン酸およびステアリルアミンが付着した薄片状アルミニウム粒子である。

[0053] さらに、比較例 5 および比較例 7 で使用される薄片状アルミニウム粒子は、アトマイズ法により得られるアルミニウム粒子を、有機溶媒の存在下で粉砕助剤を使用せずにボールミルにより粉砕することにより得られたものである。すなわち、比較例 5 および比較例 7 で使用される薄片状アルミニウム粒子は、薄片状アルミニウム粒子の表面に有機質膜が付着していない薄片状アルミニウム粒子である。

[0054] そして、実施例 4 および実施例 5 で使用される薄片状アルミニウム粒子は、プラスチックフィルムの表面（当該表面には剥離剤としてアクリル樹脂被膜が全面に形成されている）に蒸着により形成されたアルミニウム薄膜をプラスチックフィルムの表面から剥離した後に破砕することで得られたものである。すなわち、実施例 4 および実施例 5 で使用される薄片状アルミニウム粒子は、薄片状アルミニウム粒子の表面に有機質膜としてアクリル樹脂が付着した薄片状アルミニウム粒子である。

[0055] 上記で説明した実施例および比較例で使用する薄片状アルミニウム粒子の表面に付着した各有機質膜については、表 2 の「A | 粒子の有機質膜」の欄にまとめて示す。

[0056] (実施例 1)

エチルセルロース樹脂をイソプロピルアルコールとトルエンの混合有機溶剤に溶解した有機質ビヒクルに、以下の表 1 および表 2 の実施例 1 に示す薄片状アルミニウム粒子を加えて、周知の混合機にて混合した。さらにイソプロピルアルコールとトルエンの混合有機溶剤を加えて所定の粘度に調整して、本発明の導電性ペースト組成物を作製した。表 1 の実施例 1 に示すように、このようにして得られた本発明の導電性ペースト組成物において、薄片状アルミニウム粒子の質量比は 17.3 質量%であり、有機質ビヒクルと溶剤の含有量の合計は 82.7 質量%であった。得られた導電性ペースト組成物をドクターブレード法によりガラス基板上へ塗布して塗膜を形成した。塗膜の厚みを $1 \sim 2 \mu\text{m}$ の範囲内に制御した。

[0057] この塗膜を大気中にて 50°C の温度で 10 分間乾燥した後、さらに熱風乾燥機により大気中にて 350°C の温度で 60 分間脱脂処理を行った。このように処理された塗膜を焼成炉内でアルゴンガス雰囲気中にて 550°C の温度で 60 分間焼成することにより、導電性膜を形成した。

[0058] 得られた導電性膜について、後述する方法により、シート抵抗、密着性および平均表面粗度を測定した。その結果を表 1 に示す。

[0059] (実施例 2 ～ 6)

以下の表 1 および表 2 に示す各種の薄片状アルミニウム粒子を用いて、実施例 1 と同様にして、本発明の導電性ペースト組成物を作製し、この導電性ペースト組成物をガラス基板上へ塗布して塗膜を形成し、この塗膜を焼成することにより、導電性膜を形成した。得られた各種の導電性膜について、後述する方法により、シート抵抗、密着性および平均表面粗度を測定した。その結果を表 1 に示す。

[0060] (実施例 7)

実施例 6 にて作製した導電性ペースト組成物 100 質量部に、さらに $\text{B}_2\text{O}_3 - \text{SiO}_2 - \text{Bi}_2\text{O}_3$ 系ガラスフリットを 1 質量部加えて、本発明の導電性ペースト組成物を作製した。実施例 6 と同様にして、この導電性ペースト組

成物をガラス基板上へ塗布して塗膜を形成し、この塗膜を焼成することにより、導電性膜を形成した。得られた導電性膜について、後述する方法により、シート抵抗、密着性および平均表面粗度を測定した。その結果を表 1 に示す。

[0061] (実施例 8)

アクリル樹脂をターピネオールとトルエンの混合有機溶剤に溶解した有機質ビヒクルに、以下の表 1 および表 2 の実施例 8 に示す薄片状アルミニウム粒子を加えて、周知の混合機にて混合することにより、本発明の導電性ペースト組成物を作製した。この導電性ペースト組成物におけるアルミニウム粒子の質量比は 25.0 質量%であった。実施例 1 と同様にして、この導電性ペースト組成物をガラス基板上へ塗布して塗膜を形成し、この塗膜を焼成することにより、導電性膜を形成した。得られた導電性膜について、後述する方法により、シート抵抗、密着性および平均表面粗度を測定した。その結果を表 1 に示す。

[0062] (実施例 9)

以下の表 1 および表 2 の実施例 9 に示す薄片状アルミニウム粒子を用いて、実施例 1 と同様にして本発明の導電性ペースト組成物を作製した。実施例 1 と同様にして、この導電性ペースト組成物を、ガラス基板の代わりにアルミナ基板上へ塗布して塗膜を形成し、この塗膜を焼成することにより、導電性膜を形成した。得られた導電性膜について、後述する方法により、シート抵抗、密着性および平均表面粗度を測定した。その結果を表 1 に示す。

[0063] (実施例 10)

以下の表 1 および表 2 の実施例 10 に示す薄片状アルミニウム粒子を用いて、実施例 1 と同様にして、本発明の導電性ペースト組成物を作製し、この導電性ペースト組成物をガラス基板上へ塗布して塗膜を形成した。この塗膜を、焼成炉内で、アルゴンガス雰囲気代わりに窒素ガス雰囲気中にて 550℃の温度で 60 分間焼成することにより、導電性膜を形成した。得られた導電性膜について、後述する方法により、シート抵抗、密着性および平均表

面粗度を測定した。その結果を表 1 に示す。

[0064] (実施例 1 1)

以下の表 1 および表 2 の実施例 1 1 に示す薄片状アルミニウム粒子を用いて、実施例 1 と同様にして、本発明の導電性ペースト組成物を作製し、この導電性ペースト組成物をガラス基板上へ塗布して塗膜を形成した。この塗膜を、焼成炉内で、アルゴンガス雰囲気代わりに真空雰囲気中にて 550℃ の温度で 60 分間焼成することにより、導電性膜を形成した。得られた導電性膜について、後述する方法により、シート抵抗、密着性および平均表面粗度を測定した。その結果を表 1 に示す。

[0065] (実施例 1 2)

実施例 1 と同様にして本発明の導電性ペースト組成物を作製するが、導電性粉末として、以下の表 1 および表 2 の実施例 1 2 に示す含有量で薄片状アルミニウム粒子と薄片状銀粒子（平均厚み：0.1 μm、平均粒子径：5 μm）を用いた。この導電性ペースト組成物をガラス基板上へ塗布して塗膜を形成した。この塗膜を、焼成炉内でアルゴンガス雰囲気中にて 550℃ の温度で 60 分間焼成することにより、導電性膜を形成した。得られた導電性膜について、後述する方法により、シート抵抗、密着性および平均表面粗度を測定した。その結果を表 1 に示す。

[0066] (実施例 1 3)

ガラスフリットの代わりにテトラエトキシシラン（略称：TEOS）を 3 質量部加えた以外は実施例 7 と同様にして、導電性膜を形成した。得られた導電性膜について、後述する方法により、シート抵抗、密着性および平均表面粗度を測定した。その結果を表 1 に示す。

[0067] (実施例 1 4)

焼成雰囲気を空気とした以外は実施例 6 と同様にして、導電性膜を形成した。得られた導電性膜について、後述する方法により、シート抵抗、密着性および平均表面粗度を測定した。その結果を表 1 に示す。

[0068] (比較例 1 ～ 3)

以下の表 1 および表 2 の比較例 1 ～ 3 に示す薄片状アルミニウム粒子を用いた以外は、実施例 1 と同様にして、導電性ペースト組成物を作製し、この導電性ペースト組成物をガラス基板上へ塗布して塗膜を形成し、この塗布膜を焼成することにより、導電性膜を形成した。得られた各種の導電性膜について、後述する方法により、シート抵抗、密着性および平均表面粗度を測定した。その結果を表 1 に示す。

[0069] (比較例 4)

実施例 1 と同様にして本発明の導電性ペースト組成物を作製するが、導電性粉末として、以下の表 1 および表 2 の比較例 4 に示す含有量で薄片状アルミニウム粒子と薄片状銀粒子（平均厚み：0.1 μm 、平均粒子径：5 μm ）を用いた。この導電性ペースト組成物をガラス基板上へ塗布して塗膜を形成した。この塗膜を、焼成炉内でアルゴンガス雰囲気中にて 550℃の温度で 60 分間焼成することにより、導電性膜を形成した。得られた導電性膜について、後述する方法により、シート抵抗、密着性および平均表面粗度を測定した。その結果を表 1 に示す。

[0070] (比較例 5)

導電性粉末として表 1 および表 2 に示すように有機質膜を含まない薄片状アルミニウム粒子を用いた以外は実施例 1 と同様にして導電性ペースト組成物を作製した。この導電性ペースト組成物をガラス基板上へ塗布して塗膜を形成した。この塗膜を、焼成炉内でアルゴンガス雰囲気中にて 550℃の温度で 60 分間焼成することにより、導電性膜を形成した。得られた導電性膜について、後述する方法により、シート抵抗、密着性および平均表面粗度を測定した。その結果を表 1 に示す。

[0071] (比較例 6)

導電性粉末として表 1 および表 2 に示す薄片状アルミニウム粒子を用いた以外は実施例 1 と同様にして導電性ペースト組成物を作製した。この導電性ペースト組成物をガラス基板上へ塗布して塗膜を形成した。この塗膜を、焼成炉内でアルゴンガス雰囲気中にて 550℃の温度で 60 分間焼成すること

により、導電性膜を形成した。得られた導電性膜について、後述する方法により、シート抵抗、密着性および平均表面粗度を測定した。その結果を表 1 に示す。

[0072] (比較例 7)

導電性粉末として表 1 および表 2 に示すように有機質膜を含まない薄片状アルミニウム粒子を用いた以外は実施例 1 と同様にして導電性ペースト組成物を作製した。この導電性ペースト組成物をガラス基板上へ塗布して塗膜を形成した。この塗膜を、焼成炉内でアルゴンガス雰囲気中にて 550℃の温度で 60 分間焼成することにより、導電性膜を形成した。得られた導電性膜について、後述する方法により、シート抵抗、密着性および平均表面粗度を測定した。その結果を表 1 に示す。

[0073] なお、以上の実施例 1 ～ 14 と比較例 1 ～ 7 において、以下の表 1 に示す薄片状アルミニウム粒子の平均厚みと平均粒子径、薄片状アルミニウム粒子の単位表面積に対する含有酸素量、薄片状アルミニウム粒子の平均厚みに対する平均粒子径の比率である平均アスペクト比、得られた導電性膜のシート抵抗と密着性と平均表面粗度は、次に説明するようにして測定または評価した。

[0074] <平均厚み>

薄片状アルミニウム粒子の平均厚みは、特開平 06-200191 号公報および国際公開第 WO 2004/026970 号パンフレットに記載されるように、薄片状アルミニウム粉末の水面拡散面積を測定して特定の式に代入するという算出方法により得られるが、具体的な算出方法は以下のとおりである。

[0075] 薄片状アルミニウム粒子をアセトンで洗浄後、乾燥させた薄片状アルミニウム粒子の質量 w (g) と、薄片状アルミニウム粒子を水面に均一に浮かべたときの被覆面積 A (cm²) を測定し、下記の式 1 より、WCA (水面拡散面積) を算出した。次いで、WCA 値を下記の式 2 に代入して、薄片状アルミニウム粒子の平均厚みを算出した。

[0076] 式1: $WCA \text{ (cm}^2/\text{g)} = A \text{ (cm}^2) / w \text{ (g)}$

式2: 平均厚み (μm) = $10^4 / (2.5 \text{ (g/cm}^3) \times WCA)$

[0077] このような平均厚みの求め方は、例えば、Aluminum Paint and Powder, J. D. Edeards and R. I. Wray 著、第三版、Reinhold Publishing Corp, New York (1955) 出版、Pages 16~22 等に記載されている。

[0078] なお、極薄アルミニウム粒子（厚みが $0.06 \mu\text{m}$ 以下）の平均厚みは、粒子凝集により、上記のWCAを測定することが困難であるため、粒子の原子間力顕微鏡（AFM）写真において測定された無作為で選ばれた20個の粒子の厚みの平均値より求めた。

[0079] <平均粒子径>

薄片状アルミニウム粒子の平均粒子径は、レーザー回折法でマイクロトラックX100（日機装社製の測定器）を用いて測定した。

[0080] <含有酸素量>

薄片状アルミニウム粒子の含有酸素量 [mg/m^2] は、不活性ガス中溶解ー赤外線吸収法により測定された酸素含有量と、窒素吸着BET法により測定された比表面積の比（酸素含有量 [mg/g] / 比表面積 [m^2/g]）により算出した。

[0081] なお、極薄アルミニウム粒子（厚みが $0.06 \mu\text{m}$ 以下）の比表面積は、上記の方法で求められた平均厚みを下記の式3に代入して算出した。

[0082] 式3: 比表面積 (m^2/g) = $2 \times 10^4 / (2.7 \times \text{平均厚み (}\mu\text{m)})$

[0083] <平均アスペクト比>

薄片状アルミニウム粒子の平均アスペクト比は、レーザー回折法によって測定された平均粒子径と、上記の方法で測定された平均厚みとの比（平均粒子径 [μm] / 平均厚み [μm]）により算出した。

[0084] <シート抵抗>

得られた導電性膜のシート抵抗は、4探針式表面抵抗測定器（ナプソン社製RG-5型シート抵抗測定器）で測定した。測定条件は電圧を4mV、電

流を100mA、導電性膜の表面に与えられる荷重を200grf（1.96N）とした。

[0085] <密着性>

得られた導電性膜の基板との密着性は、セロテープ（登録商標：ニチバン（株）製、CT-24）を導電性膜に密着させ、45度の角度で引っ張り、導電性膜（導電性膜中のアルミニウム粒子）の剥離度合いを目視で観察した。観察結果に応じて、「良好」：剥離なし、「不可」：剥離あり、と評価した。

[0086] <平均表面粗度>

導電性膜の平均表面粗度 R_a は、表面粗度計（東京精密製のSURFCOM 1400D）を用いて測定した。

[0087]

[表1]

実施例	アルミニウム粒子				ガラスフリット 又は 金属アルコキッド	銀粒子 含有量 (質量%)	有機質ビヒクル+溶剤		基板	焼成雰囲気	導電性膜		
	厚み (μm)	粒子径 (μm)	アスペク ト比	酸素量 (mg/m^2)			含有量 (質量%)	バインダー種			含有量 (質量%)		
実施例1	0.71	24.8	35	7	17.3	無添加	セルロース系	82.7	ガラス質	アルゴン	65	良好	0.91
実施例2	0.47	18.8	40	7	17.3	無添加	セルロース系	82.7	ガラス質	アルゴン	48	良好	0.83
実施例3	0.25	10.5	42	7	17.3	無添加	セルロース系	82.7	ガラス質	アルゴン	28	良好	0.69
実施例4	0.04	11.9	298	10	14.5	無添加	セルロース系	85.5	ガラス質	アルゴン	262	良好	0.48
実施例5	0.04	13.7	343	12	14.5	無添加	セルロース系	85.5	ガラス質	アルゴン	384	良好	0.62
実施例6	0.06	15.2	253	4	14.5	無添加	セルロース系	85.5	ガラス質	アルゴン	23	良好	0.55
実施例7	0.06	15.2	253	4	14.5	ガラスフリット	セルロース系	85.5	ガラス質	アルゴン	32	良好	0.55
実施例8	0.06	15.2	253	4	25.0	無添加	アクリル系	75.0	ガラス質	アルゴン	40	良好	0.49
実施例9	0.06	15.2	253	4	14.5	無添加	セルロース系	85.5	アルミナ質	アルゴン	29	良好	0.50
実施例10	0.06	15.2	253	4	14.5	無添加	セルロース系	85.5	ガラス質	窒素	52	良好	0.56
実施例11	0.06	15.2	253	4	14.5	無添加	セルロース系	85.5	ガラス質	真空	28	良好	0.48
実施例12	0.06	15.2	253	4	13.6	無添加	セルロース系	84.0	ガラス質	アルゴン	19	良好	0.55
実施例13	0.06	15.2	253	4	14.5	TEOS	セルロース系	85.5	ガラス質	アルゴン	28	良好	0.51
実施例14	0.06	15.2	253	4	14.5	無添加	セルロース系	85.5	ガラス質	空気	30	良好	0.53
比較例1	0.98	26.3	27	6	17.3	無添加	セルロース系	82.7	ガラス質	アルゴン	234	不可	1.30
比較例2	0.04	17.5	438	17	14.5	無添加	セルロース系	85.5	ガラス質	アルゴン	757	良好	0.78
比較例3	0.04	22.0	550	19	14.5	無添加	セルロース系	85.5	ガラス質	アルゴン	906	良好	0.95
比較例4	0.04	17.5	438	17	13.6	無添加	セルロース系	84.0	ガラス質	アルゴン	645	良好	0.68
比較例5	1.05	21.1	20	14	14.5	無添加	セルロース系	82.7	ガラス質	アルゴン	1300	不可	1.51
比較例6	0.04	11.9	438	20	14.5	無添加	セルロース系	84.0	ガラス質	アルゴン	2200	良好	0.47
比較例7	1.05	21.1	20	14	14.5	無添加	セルロース系	84.0	ガラス質	アルゴン	1600	不可	1.12

- [0088] 表 1 に示す実施例 1 ～ 14 の結果から、ペースト組成物中の導電性粉末として、平均厚みが $0.8 \mu\text{m}$ 以下、かつ、粒子の単位表面積に対する含有酸素量の比率が $15 \text{ mg}/\text{m}^2$ 以下の薄片状アルミニウム粒子を用いて基板に導電性膜を形成すれば、相対的に低いシート抵抗を示し、平均表面粗度 R_a が $1.00 \mu\text{m}$ 以下であり、導電性、表面平滑性、および、基材との密着性がともに良好な導電性膜を得ることができることがわかる。
- [0089] 特に、含有酸素量が同程度の実施例 1 と比較例 1 とを比較すると、薄片状アルミニウム粒子の平均厚みが $0.8 \mu\text{m}$ を超えている比較例 1 に対して、平均厚みが $0.8 \mu\text{m}$ 以下である実施例 1 では、平均表面粗度 R_a が $1.00 \mu\text{m}$ 以下であり、かつ、導電性膜の基板との密着性が良好であることがわかる。
- [0090] 薄片状アルミニウム粒子の平均厚みが同程度の実施例 4、5 と比較例 2、3 とを比較すると、含有酸素量が $15 \text{ mg}/\text{m}^2$ を超えている比較例 2、3 に対して、含有酸素量が $15 \text{ mg}/\text{m}^2$ 以下である実施例 4、5 では、シート抵抗が小さいことがわかる。
- [0091] 薄片状アルミニウム粒子と薄片状銀粒子との混合物を用いた実施例 12 と比較例 4 とを比較すると、含有酸素量が $15 \text{ mg}/\text{m}^2$ を超えている比較例 4 に対して、含有酸素量が $15 \text{ mg}/\text{m}^2$ 以下である実施例 12 では、シート抵抗が小さいことがわかる。
- [0092] 実施例 1 ～ 14、比較例 1 ～ 7 で得られた導電性膜について、以下の分析を行った。得られた結果を表 2 に示す。
- [0093] < X 線回折分析チャートの Al_2O_3 / Al ピーク強度比 >
- 得られた導電性膜を、基板に塗布・焼成された状態のまま、X 線回折装置（（株）Rigaku 製 RINT2000）を用いて粉末 X 線回折分析を行った。得られた X 線回折チャートにおいて、Al の（200）面に対応するピークの強度（カウント値）P1 と、 $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ の（400）面に対応するピークの強度（カウント値）P2 を読み取り、 $P2/P1$ の値を計算した。その結果を表 2 に示す。

[0094] <導電性膜の断面中の薄片状アルミニウム粒子の面積占有率>

得られた導電性膜を、ガラス基板に塗布・焼成された状態のまま、ダイヤモンドカッターで切断し、研磨した後、断面のAlの分布をX線マイクロアナライザーにより観察した。観察した10個の画像について画像解析ソフト（Image-Pro Plus Ver. 4）を用いて薄片状アルミニウム粒子の面積占有率を算出した。その値を表2に示す。

[0095] <薄片状アルミニウム粒子の平均傾斜角度>

上記の導電性膜の断面中の薄片状アルミニウム粒子の面積占有率測定に用いた10個の画像について、画像解析ソフト（上記と同じ）を用いて薄片状アルミニウム粒子のガラス基板面に対する傾斜角度を個々に測定し、その平均値を算出して平均傾斜角度とした。その値を表2に示す。

[0096] [表2]

	Al粒子の有機質膜	Al ₂ O ₃ /Al ピーク強度比	断面のAl面積占有率(%)	薄片状Alの平均傾斜角度(°)
実施例1	オレイン酸	0.05	85	1.4
実施例2	ステアリン酸	0.04	89	1.3
実施例3	ステアリンアミン	0.08	92	0.8
実施例4	アクリル樹脂	0.10	87	1.5
実施例5	アクリル樹脂	0.14	86	1.6
実施例6	オレイン酸	0.08	93	0.7
実施例7	オレイン酸	0.12	82	1.7
実施例8	オレイン酸	0.08	92	0.8
実施例9	オレイン酸	0.09	94	0.8
実施例10	オレイン酸	0.10	93	0.8
実施例11	オレイン酸	0.11	93	0.8
実施例12	オレイン酸	0.13	82	1.2
実施例13	オレイン酸	0.09	88	1.2
実施例14	オレイン酸	0.10	94	0.8
比較例1	オレイン酸	0.18	73	5.4
比較例2	オレイン酸	0.35	94	0.7
比較例3	オレイン酸	0.44	91	0.8
比較例4	オレイン酸	0.31	94	0.7
比較例5	無し	0.55	75	6.7
比較例6	オレイン酸	0.23	89	0.7
比較例7	無し	0.11	77	3.4

[0097] 以上に開示された実施の形態や実施例はすべての点で例示であって制限的なものではないと考慮されるべきである。本発明の範囲は、以上の実施の形態や実施例ではなく、請求の範囲によって示され、請求の範囲と均等の意味および範囲内でのすべての修正や変形を含むものと意図される。

産業上の利用可能性

[0098] 本発明の導電性ペースト組成物およびそれを用いて形成された導電性膜は、各種基板上や電子デバイスにおける電極または配線の形成などに適用する

ことができる。

請求の範囲

- [請求項1] 導電性粉末として薄片状アルミニウム粒子を含み、前記薄片状アルミニウム粒子の平均厚みが $0.8\ \mu\text{m}$ 以下であり、前記薄片状アルミニウム粒子の単位表面積に対する含有酸素量の比率が $15\ \text{mg}/\text{m}^2$ 以下である、導電性ペースト組成物。
- [請求項2] 前記薄片状アルミニウム粒子の平均厚みに対する平均粒子径の比率である平均アスペクト比が30以上500以下である、請求項1に記載の導電性ペースト組成物。
- [請求項3] 前記薄片状アルミニウム粒子が有機質膜で被覆されている、請求項1に記載の導電性ペースト組成物。
- [請求項4] 前記有機質膜が、脂肪酸、脂肪族アミン、脂肪族アルコール、脂肪族のエステル化合物および樹脂からなる群より選ばれた少なくとも1種を含む、請求項1に記載の導電性ペースト組成物。
- [請求項5] 有機質ビヒクル、ガラスフリットおよび金属アルコキシドからなる群より選ばれた少なくとも1種をさらに含む、請求項1に記載の導電性ペースト組成物。
- [請求項6] 請求項1に記載の導電性ペースト組成物を用いて形成された導電性膜であって、平均表面粗度 R_a が $1\ \mu\text{m}$ 以下である、導電性膜。
- [請求項7] 当該導電性膜のX線回折分析により得られたチャートにおいて、 Al の(200)面に対応する回折ピークに対する $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ の(400)面に対応する回折ピークのピーク強度比が、0.2以下である、請求項6に記載の導電性膜。
- [請求項8] 当該導電性膜の断面観察において、導電性膜の断面中の薄片状アルミニウム粒子の面積占有率が80%以上であり、前記薄片状アルミニウム粒子の平均傾斜角度が 3° 以下である、請求項6に記載の導電性膜。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2010/001400

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

H01B1/22(2006.01)i, H01B1/00(2006.01)i, H01B5/14(2006.01)i, H01L21/28
(2006.01)i, H01L21/288(2006.01)i, H01L21/3205(2006.01)i, H01L23/52
(2006.01)i, H05K1/09(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)

H01B1/22, H01B1/00, H01B5/14, H01L21/28, H01L21/288, H01L21/3205,
H01L23/52, H05K1/09

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

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2010
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2010	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2010

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.
Y	JP 7-14428 A (Hitachi Chemical Co., Ltd.), 17 January 1995 (17.01.1995), entire text (Family: none)	1-8
Y	JP 2001-338529 A (Togo Seisakusyo Corp.), 07 December 2001 (07.12.2001), entire text (Family: none)	1-8
X Y	JP 2005-197118 A (Sumitomo Bakelite Co., Ltd.), 21 July 2005 (21.07.2005), entire text (Family: none)	1-5 2-4, 6-8

☒ 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
14 June, 2010 (14.06.10)

Date of mailing of the international search report
29 June, 2010 (29.06.10)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2010/001400

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2005-200734 A (Dowa Mining Co., Ltd.), 28 July 2005 (28.07.2005), entire text (Family: none)	2, 6-8
P, X	JP 2009-105045 A (Daiichi Keori Kabushiki Kaisha), 14 May 2009 (14.05.2009), entire text & US 2009/108755 A1	1-8
A	JP 5-298917 A (Okuno Chemical Industries Co., Ltd.), 12 November 1993 (12.11.1993), entire text (Family: none)	1-8
A	JP 10-188670 A (Hitachi Chemical Co., Ltd.), 21 July 1998 (21.07.1998), entire text (Family: none)	1-8
A	JP 2002-109957 A (JSR Corp.), 12 April 2002 (12.04.2002), entire text (Family: none)	1-8

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. H01B1/22(2006.01)i, H01B1/00(2006.01)i, H01B5/14(2006.01)i, H01L21/28(2006.01)i,
H01L21/288(2006.01)i, H01L21/3205(2006.01)i, H01L23/52(2006.01)i, H05K1/09(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（I P C））

Int.Cl. H01B1/22, H01B1/00, H01B5/14, H01L21/28, H01L21/288, H01L21/3205, H01L23/52, H05K1/09

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	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 1 0 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 0 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 0 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
Y	JP 7-14428 A（日立化成工業株式会社）1995.01.17, 全文 （ファミリーなし）	1-8
Y	JP 2001-338529 A（株式会社東郷製作所）2001.12.07, 全文 （ファミリーなし）	1-8
X Y	JP 2005-197118 A（住友ベークライト株式会社）2005.07.21, 全文 （ファミリーなし）	1-5 2-4, 6-8

☒ 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

「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
「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
「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）
「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

「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

「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

「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

「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

1 4 . 0 6 . 2 0 1 0

国際調査報告の発送日

2 9 . 0 6 . 2 0 1 0

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁（I S A / J P）

郵便番号 1 0 0 - 8 9 1 5

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）

原 賢一

4 X

9 0 6 2

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 4 7 7

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
Y	JP 2005-200734 A (同和鉱業株式会社) 2005.07.28, 全文 (ファミリーなし)	2,6-8
PX	JP 2009-105045 A (第一毛織株式会社) 2009.05.14, 全文 &US 2009/108755 A1	1-8
A	JP 5-298917 A (奥野製薬工業株式会社) 1993.11.12, 全文 (ファミリーなし)	1-8
A	JP 10-188670 A (日立化成工業株式会社) 1998.07.21, 全文 (ファミリーなし)	1-8
A	JP 2002-109957 A (ジェイエスアール株式会社) 2002.04.12, 全文 (ファミリーなし)	1-8