

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2005-154904  
(P2005-154904A)

(43) 公開日 平成17年6月16日(2005.6.16)

(51) Int. Cl. <sup>7</sup>	F I	テーマコード (参考)
B 2 2 F 1/00	B 2 2 F 1/00	M 4 K O 1 7
B 2 2 F 1/02	B 2 2 F 1/02	B 4 K O 1 8
B 2 2 F 9/24	B 2 2 F 9/24	C 5 E O O 1
C 2 2 C 1/00	C 2 2 C 1/00	L 5 E O 8 2
C 2 2 C 19/03	C 2 2 C 19/03	M 5 G 3 O 1

審査請求 未請求 請求項の数 13 O L (全 14 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2004-340370 (P2004-340370)  
 (22) 出願日 平成16年11月25日 (2004.11.25)  
 (31) 優先権主張番号 2003-084172  
 (32) 優先日 平成15年11月25日 (2003.11.25)  
 (33) 優先権主張国 韓国 (KR)  
 (31) 優先権主張番号 2004-091458  
 (32) 優先日 平成16年11月10日 (2004.11.10)  
 (33) 優先権主張国 韓国 (KR)

(71) 出願人 390019839  
 三星電子株式会社  
 大韓民国京畿道水原市靈通区梅灘洞 4 1 6  
 (74) 代理人 100072349  
 弁理士 八田 幹雄  
 (74) 代理人 100110995  
 弁理士 奈良 泰男  
 (74) 代理人 100111464  
 弁理士 齋藤 悦子  
 (74) 代理人 100114649  
 弁理士 宇谷 勝幸  
 (74) 代理人 100124615  
 弁理士 藤井 敏史

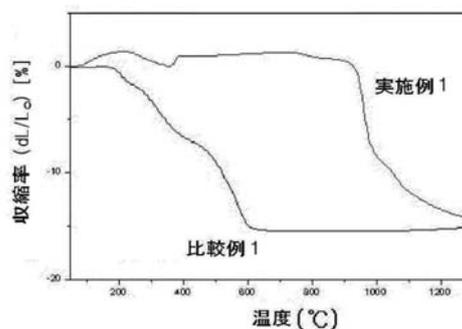
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 炭素含有ニッケル粒子粉末およびその製造方法

(57) 【要約】

【課題】 炭素含有ニッケル粒子粉末を提供する。  
 【解決手段】 炭素の存在によって、焼成時に改善された収縮特性を有する炭素含有ニッケル粒子粉末。また、本発明の炭素含有ニッケル粒子粉末は極めて抑制された凝集体形成度を有する。

【選択図】 図 3



**【特許請求の範囲】****【請求項 1】**

ニッケル金属粒子と、前記ニッケル金属粒子に含まれる炭素と、を含む炭素含有ニッケル粒子。

**【請求項 2】**

前記炭素は、前記ニッケル金属粒子の表面に吸着するおよび/または前記ニッケル金属粒子内に浸透する、請求項 1 に記載の炭素含有ニッケル粒子。

**【請求項 3】**

前記ニッケル金属粒子の表面層または表面上に分布する炭素を含む、請求項 1 に記載の炭素含有ニッケル粒子。

10

**【請求項 4】**

前記表面層の厚さが 0.5 ~ 100 nm である、請求項 3 に記載の炭素含有ニッケル粒子。

**【請求項 5】**

前記炭素含有ニッケル粒子の炭素含有量が、炭素含有ニッケル粒子の全質量に対して、0.1 ~ 7 質量% である、請求項 1 ~ 4 のいずれか 1 項に記載の炭素含有ニッケル粒子。

**【請求項 6】**

前記炭素含有ニッケル粒子の平均粒径が 30 ~ 800 nm である、請求項 1 ~ 5 のいずれか 1 項に記載の炭素含有ニッケル粒子。

**【請求項 7】**

前記炭素含有ニッケル粒子の平均粒径が 30 ~ 300 nm である、請求項 6 に記載の炭素含有ニッケル粒子。

20

**【請求項 8】**

請求項 1 ~ 7 のいずれか 1 項に記載の炭素含有ニッケル粒子を含む炭素含有ニッケル粒子粉末。

**【請求項 9】**

ニッケル金属粒子粉末とポリオールとを含む原料分散液を準備する段階と、前記原料分散液を加熱して前記ニッケル粒子に炭素を含有させる段階と、を含む炭素含有ニッケル粒子粉末の製造方法。

**【請求項 10】**

前記ポリオールは、グリコール系化合物である、請求項 9 に記載の方法。

30

**【請求項 11】**

前記原料分散液を加熱する段階の加熱温度は、150 ~ 350 である、請求項 9 または 10 に記載の方法。

**【請求項 12】**

前記原料分散液を加熱する段階で、前記原料分散液のうち前記ポリオールが沸騰するように前記原料分散液を加熱する、請求項 9 ~ 11 のいずれか 1 項に記載の方法。

**【請求項 13】**

請求項 8 に記載の炭素含有ニッケル粒子粉末と、有機バインダと、有機溶媒と、を含む導電性ペースト。

40

**【発明の詳細な説明】****【技術分野】****【0001】**

本発明は、炭素含有ニッケル粒子粉末、これに使用される炭素含有ニッケル粒子、炭素含有ニッケル粒子粉末の製造方法、及び当該炭素含有ニッケル粒子粉末を用いた導電性ペーストに関する。より詳しくは、本発明は、凝集体形成度が極めて低く、焼成過程での収縮特性が改善された、炭素含有ニッケル粒子粉末、これに使用される炭素含有ニッケル粒子、炭素含有ニッケル粒子粉末の製造方法、及び当該炭素含有ニッケル粒子粉末を用いた導電性ペーストに関する。

50

## 【背景技術】

## 【0002】

ニッケル粉末は様々な用途で使われる。その代表的な例としては、ニッケル粉末は、積層セラミックコンデンサ（MLCC：multi-layer ceramic capacitor）の内部電極用材料として使われる。

## 【0003】

一般的に、MLCCは、複数の誘電体薄層と複数の内部電極とを積層することによって製造される。このようなMLCCは、小さな体積でも大きい蓄電容量を発揮するために、例えば、コンピュータ、移動通信機器などの、様々な電子機器に広く使われている。

## 【0004】

MLCCの内部電極の材料としては、Ag-Pd合金が使われてきた。Ag-Pd合金は、空气中で焼成されうるので、MLCCの製造に容易に適用されうが、コストが高いという問題があった。このため、1990年代後半にMLCCのコストを下げるために、内部電極材料を安いニッケルに代替する傾向が生じた。MLCCのニッケル内部電極は、ニッケル金属粉末を含む導電性ペーストを塗布した後、乾燥させて共焼成させることによって形成される。

10

## 【0005】

持続的な電子機器の小型化は、電子部品、特に、MLCCの小型化を要求している。MLCCの小型化はセラミック誘電体層と内部電極層の超薄膜化を要求する。

## 【0006】

一般的に、MLCCは、セラミック誘電体層と内部電極層とを共焼成させることによって製造される。この時、焼成前の内部電極層は有機ビヒクルを高含量で含んでおり、低い充填密度を有するため、共焼成段階で内部電極層の収縮率がセラミック誘電体層の収縮率より高い。また、ニッケルの収縮開始温度は、約400～約500である一方、セラミック誘電体層の材料として広く使われるBaTiO<sub>3</sub>の収縮開始温度は約1100以上である。このような内部電極層とセラミック誘電体層間の収縮率及び収縮開始温度の差は、内部電極の連結性の低下と層間分離を引き起こす。

20

## 【0007】

ニッケル粉末の収縮率を減少させ、ニッケル粉末の収縮開始温度を上げるために、ニッケル粉末の酸素含有量を減少させる方法、酸化物でコーティングされたニッケル粉末のような複合ニッケル粉末を使用する方法などが提案されてきた。ニッケル粉末をコーティングするための酸化物としては、MgO、SiO<sub>2</sub>、TiO<sub>2</sub>、BaTiO<sub>3</sub>、希土類元素の酸化物などがある。ニッケル粉末を酸化物でコーティングする方法としては、ハイブリダイザーを利用した「乾式機械化学的混合法(Dry-type mechanochemical mixing)」(特許文献1参照)、「噴霧熱分解法(Spray pyrolysis)」(特許文献2参照)、「湿式ゾル-ゲルコーティング法(Wet-type sol-gel coating)」(特許文献3参照)などが使われた。

30

## 【0008】

機械化学的混合法で製造された酸化物コーティングニッケル粉末の場合には、酸化物粒子とニッケル粒子間の付着(結合)力が弱く、ペースト調製時に酸化物コーティングニッケル粉末が酸化物粒子とニッケル粒子に分かれてしまう可能性がある。その上、機械化学的混合法で生産された酸化物コーティングニッケル粉末の熱収縮率の改善効果は非常に低いことが知られている(特許文献1参照)。

40

## 【0009】

また、噴霧熱分解法では、コーティング層を形成できる熱分解性化合物とNi前駆体を含む溶液を噴霧した後、熱分解することによって複合酸化物を含むニッケル粉末を製造する。しかしながら、上記噴霧熱分解法で製造されたニッケル粉末の場合には、ニッケル粒子の表面だけではなく、ニッケル粒子の内部にも酸化物が形成されるため、前記酸化物が、ニッケル電極が形成された後で不純物として残留してしまう(特許文献2参照)。

## 【0010】

50

湿式ゾル-ゲルコーティング法では、コーティング層を形成する材料の水溶液中にニッケル粉末を添加して、前記溶液とニッケル粉末とを反応させることによって、ニッケル粉末に対する物理/化学的コーティングを行なう。その後、このようにコーティングされたニッケル粉末を熱処理することによって、コーティングされたニッケル粉末のコーティング層を結晶化させる。機械化学的混合法で製造された酸化物コーティングニッケル粉末に比べて、湿式ゾル-ゲルコーティング法で製造された酸化物コーティングニッケル粉末は、コーティング層への付着(結合)力がより強い。また、噴霧熱分解法で製造された酸化物コーティングニッケル粉末とは異なり、湿式ゾル-ゲルコーティング法で製造された酸化物コーティングニッケル粉末はその表面にのみ所望の量の酸化物層を有する。

【0011】

しかしながら、ほとんどの湿式ゾル-ゲルコーティング法は水系のコーティング溶液を使用するために(特許文献4参照)、製造されたニッケル粉末のコーティング層には水酸化基が残留する。乾燥過程で、このような残留水酸化基の縮合反応によって、酸化物コーティングニッケル粉末の凝集が発生する。乾燥過程で発生した凝集体は、コーティング層の結晶化のための熱処理過程でも形成したままであり、コーティング層の結晶化が進むほど凝集体の凝集強度はさらに増加する。

【0012】

酸化物でコーティングされたニッケル粉末を有機溶媒に分散して導電性ペーストを形成し、この導電性ペーストを誘電体シート上に印刷して、内部電極層を形成する。この時、導電性ペースト内のニッケル粉末の凝集は、誘電体シート上に印刷された内部電極層の特性に致命的な影響を及ぼす。すなわち、凝集されたニッケル粉末が内部電極層の表面上に突出して、内部電極層の粗面度が増加する。粗面度が増加した内部電極層を焼成すると、内部電極層の断絶現象が発生し、それによってMLCCの品質が低下する。

【特許文献1】特開平11-343501号公報

【特許文献2】米国特許第6,007,743号明細書

【特許文献3】特開2002-025847号公報

【特許文献4】特開2001-131602号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0013】

本発明では、凝集体形成度が極めて低く、焼成過程での収縮特性が改善された、複合ニッケル粒子粉末を製造するのに使用される複合ニッケル粒子である炭素含有ニッケル粒子を提供することを目的とする。

【0014】

また、本発明では、凝集体形成度が極めて低く、焼成過程での収縮特性が改善された、複合ニッケル粒子粉末である炭素含有ニッケル粒子粉末を提供することを目的とする。

【0015】

また、本発明の他の目的は、このような複合ニッケル粒子粉末を製造する方法を提供することである。

【0016】

また、本発明のさらなる他の目的は、このような複合ニッケル粒子粉末を含有する導電性ペーストを提供することである。

【課題を解決するための手段】

【0017】

上記目的は、ニッケル金属粒子と、前記ニッケル金属粒子に含まれる炭素と、を含む炭素含有ニッケル粒子によって達成される。

【0018】

また、上記目的は、ニッケル金属粒子と、前記ニッケル金属粒子に含まれる炭素と、を含む炭素含有ニッケル粒子を含む炭素含有ニッケル粒子粉末によっても達成される。本発明で提供する複合ニッケル粒子粉末は、炭素含有ニッケル粒子粉末であり、本発明の炭素

10

20

30

40

50

含有ニッケル粒子粉末は、ニッケル粒子に含まれた炭素の存在によって、焼成時に改善された収縮特性を有する。また、後述する製造方法によって製造されることによって、本発明の炭素含有ニッケル粒子粉末は極めて抑制された凝集体形成度を有する。

【0019】

上記他の目的は、ニッケル金属粒子粉末とポリオールとを含む原料分散液を準備する段階と、前記原料分散液を加熱して、前記ニッケル金属粒子に炭素を含有させる段階と、を含む炭素含有ニッケル粒子粉末の製造方法によって達成される。

【0020】

上記さらなる他の目的は、上記炭素含有ニッケル粒子粉末、有機バインダ及び有機溶媒を含む導電性ペーストによって達成される。

10

【発明の効果】

【0021】

本発明の炭素含有ニッケル粒子粉末を使用することによって、印刷された電極層の均一性が極めて向上でき、それによって、焼成時の内部電極の断絶現象が極めて抑制される。また、焼成過程で電極層の均一な収縮が誘導されるので、電極内部の応力発生が極めて低減できる。

【発明を実施するための最良の形態】

【0022】

以下、本発明の炭素含有ニッケル粒子粉末を詳細に説明する。

【0023】

本発明で提供する炭素含有ニッケル粒子粉末は、炭素含有ニッケル粒子を含む。前記炭素含有ニッケル粒子は、ニッケル金属粒子と、前記ニッケル金属粒子に含まれる炭素と、を含む。

20

【0024】

本発明において、炭素は、いずれの形態で使用されてもよく特に制限されず、原子または粒子のいずれの形態でもありうる。前記炭素は、前記ニッケル金属粒子の表面に吸着されている場合があり、前記ニッケル金属粒子内に浸透している場合もある。または、前記炭素含有ニッケル粒子は、前記ニッケル金属粒子の表面に吸着されている炭素（例えば、ニッケル粒子が炭素でコーティングされている形態）と前記ニッケル金属粒子内に浸透している炭素とを含有する場合もある。

30

【0025】

前記ニッケル金属粒子内に含まれる炭素のニッケル金属粒子中での存在形態は特に制限されないが、例えば、前記ニッケル金属粒子内に含まれる炭素は、前記ニッケル金属粒子の全体にわたって均一に分散されている、または前記ニッケル金属粒子の表面層に分布する、または前記ニッケル金属粒子の表面上に分布する。本明細書において、「ニッケル金属粒子の表面層」とは、ニッケル金属粒子の表面を含む広い概念で理解されうる。なお、「ニッケル金属粒子の表面層」としては、下記理論に制限されるものではないが、ニッケル金属粒子に含まれた炭素がニッケル粒子の表面上に被覆されて形成された層がある。

【0026】

前記炭素が前記ニッケル金属粒子の表面層にのみ分布する実施態様において、ニッケル金属粒子の表面層の厚さが薄すぎると、焼成過程での収縮を抑制する効果が微弱である場合があり、厚すぎると、焼成過程後、ニッケル金属内に過度な不純物が残留する可能性がある。このような点を考慮すると、前記表面層の厚さは、約0.5～約100nm、より好ましくは約2～約100nm、であることが好ましい。しかしながら、特定適用分野での必要性に応じて、ニッケル金属粒子のサイズ（粒径）によって、前記範囲を外れる厚さの表面層を有する炭素含有ニッケル粒子も有用に使われうる。

40

【0027】

前記炭素含有ニッケル粒子の炭素含有量は、表面層の厚さ、炭素の吸着程度、炭素の侵入程度などによって異なり、低い凝集体形成度や焼成過程での収縮特性の改善が達成できるような量であれば特に制限されない。ただし、前記炭素含有ニッケル粒子の炭素含有量

50

が少なすぎる場合には、焼成過程での収縮を抑制する効果が微弱である場合があり、多すぎると、焼成過程後、ニッケル金属内に過度な炭素系不純物が残留する可能性がある。これらの点を考慮すると、前記炭素含有ニッケル粒子の炭素含有量は、炭素含有ニッケル粒子の全質量に対して、約0.1～約7質量%、より好ましくは約0.5～約7質量%であることが好ましい。

#### 【0028】

前記炭素含有ニッケル粒子の平均サイズは特別に制限されず、具体的な適用分野で要求される条件によって適切に選択されうる。具体的には、前記炭素含有ニッケル粒子の平均粒径は、約30～約8000nm程度である。また、本発明の炭素含有ニッケル粒子粉末がMLCCの内部電極材料として適用される場合には、前記炭素含有ニッケル粒子の平均粒径は、望ましくは約30～約800nm、さらに望ましくは約30～約300nmである。

10

#### 【0029】

前記ニッケル金属粒子は、例えば、FCC(face-centered cubic)またはHCP(hexagonal closed packed)のような様々な結晶構造を有しうる。さらには、前記ニッケル金属粒子は非晶質状態であってもよい。前記ニッケル金属粒子の形態は特別に制限されないが、例えば、球状、円盤状、針状または板状でありうる。

#### 【0030】

本発明の炭素含有ニッケル粒子粉末の用途は、このようなニッケル粒子粉末が一般的に使用されている分野などいずれの用途にも適用できるが、代表的な用途としては、MLCCの内部電極の製造に使用される材料として使われるものがある。この場合には、MLCCの製造過程中、共焼成段階で、本発明の炭素含有ニッケル粒子粉末は、約800以上の収縮開始温度を示す。これにより、約400～約500の収縮開始温度を示す炭素無含有ニッケル金属粒子を使用した場合に比べて、誘電体層の収縮開始温度との差が縮まり、収縮開始温度の改善が得られる。また、本発明の炭素含有ニッケル粒子粉末を使用すれば、内部電極の断絶現象が極めて抑制される。これは、MLCCの製造過程中、共焼成段階で、本発明の炭素含有ニッケル粒子粉末が極めて低減した収縮率を示すことを意味する。この時、炭素含有ニッケル粒子粉末の収縮率は、MLCCの誘電層の収縮率に対する相対的な収縮率である。本発明の炭素含有ニッケル粒子粉末が極めて低減した収縮率を示すことは、本発明の炭素含有ニッケル粒子粉末の収縮開始温度と誘電体材料の収縮開始温度との差が減少したことに起因する。

20

30

#### 【0031】

焼成過程で、本発明の炭素含有ニッケル粒子粉末に含まれる炭素は、約900以上の温度のような高温下で、COまたはCO<sub>2</sub>などの形態に酸化されて、除去される。したがって、本発明の炭素含有ニッケル粒子粉末を用いて製造されるニッケル電極は、ニッケル金属に固有の高い電気伝導性を有しうる。

#### 【0032】

本発明の炭素含有ニッケル粒子粉末は、MLCCの電極形成用ペースト、LTCC用ペースト、ペイント添加剤、CNT成長用触媒、水素貯蔵材料、化学反応促進用触媒などの多様な用途として使われうる。

40

#### 【0033】

以下、本発明の炭素含有ニッケル粒子粉末の製造方法を詳細に説明する。

#### 【0034】

本発明の方法は、ニッケル金属粒子粉末及びポリオールを含む原料分散液を準備する段階と、前記原料分散液を加熱して前記ニッケル金属粒子に炭素を含有させる段階と、を含む。

#### 【0035】

本発明において、ニッケル金属粒子粉末は、特に制限されず、市販品を使用してもあるいは公知の方法によって製造されたものを使用してもよい。市販品としては、NF1A、NF3A(以上、東邦社製)、YH642、YH643、NST-920、NST-94

50

0 (以上、住友社製)、NFP201S (川鉄社製)、609S (昭栄社製) などの多様な商用製品が使われる。また、ニッケル金属粒子粉末の製造方法としては、気相法 (例えば、米国特許第 6,235,077 号に記載される方法など)、噴霧熱分解法 (例えば、米国特許第 5,964,918 号に記載される方法など)、及び液相還元法 (例えば、米国特許第 6,120,576 号に記載される方法など) などの多様な方法で製造されたものも使われうるが、必ずしもこれらに限定されるものではない。

【0036】

前記ニッケル金属粒子粉末の形態は、特に制限されず、FCC または HCP のような結晶状であってもあるいは非晶質状であってもよい。前記ニッケル金属粒子粉末の平均粒径は、特別に制限されないが、典型的には約 10 ~ 8000 nm 程度でありうる。

10

【0037】

本発明において、ポリオールは、前記ニッケル金属粒子粉末の分散媒質としての役割及び前記ニッケル金属粒子粉末にするために還元雰囲気を提供する役割とを果たす。前記ポリオールは、上記したような作用をするものであれば特に制限されないが、2個または3個以上の水酸基を有するアルコール化合物である。

【0038】

前記ポリオールのうち、2個の水酸基を有するアルコール化合物としては、2価アルコールである脂肪族グリコール、またはこれに相応するグリコールポリエステルなどがある。脂肪族グリコールの具体的な例としては、エタンジオール、1,2-プロパンジオールや1,3-プロパンジオール等のプロパンジオール、1,2-ブタンジオール、1,3-ブタンジオール、1,4-ブタンジオール、2,3-ブタンジオール等のブタンジオール、ペンタンジオール、ヘキサンジオールなどの炭素数 2 ~ 6 の主鎖を有するアルキレングリコール; このようなアルキレングリコールから誘導された、例えばポリエチレングリコールなどのポリアルキレングリコールがある。また、脂肪族グリコールの他の具体的な例としては、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、ジプロピレングリコールなどがある。

20

【0039】

また、前記ポリオールの他の例としての3個の水酸基を有するアルコール化合物としては、3価アルコールであるグリセロールなどがある。

【0040】

前記ポリオールは、上記で列挙されたポリオール系の化合物で制限されるものではなく、また、このようなポリオール系の化合物は、単独で使用されてもまたは2種以上の組合わせで使用されてもよい。

30

【0041】

さらに望ましくは、前記ポリオールとしては、グリコール系化合物であり、特にエチレングリコール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、テトラエチレングリコール、1,2-プロパンジオール、1,3-プロパンジオール、ジプロピレングリコール、1,2-ブタンジオール、1,3-ブタンジオール、1,4-ブタンジオール及び2,3-ブタンジオールが望ましく使用される。

【0042】

前記原料分散液におけるポリオールの含有量は特別に制限されない。前記原料分散液におけるポリオールの含有量が少なすぎると、製造された粉末で凝集体が過度に形成する場合があります、逆に多すぎると、過度な量でポリオールが使用されるため経済的に好ましくないおそれがある。このような点を考慮すると、前記原料分散液におけるポリオールの含有量は、前記ニッケル金属粒子粉末 100 質量部を基準として、約 200 ~ 約 1,000,000 質量部であることが好ましい。

40

【0043】

前記原料分散液中で前記ニッケル金属粒子の表面/表面層に炭素コーティングを形成するために、前記原料分散液を加熱する。この過程で、ポリオール成分が炭素に分解して、生成した炭素がニッケル金属粒子の表面に吸着またはニッケル金属粒子内に浸透する。

50

## 【0044】

本明細書において、「加熱」とは、前記原料分散液の温度を、室温を超える、具体的には約20 を超える温度にまで上昇させることを意味する。前記加熱段階の温度は固定値であっても、または室温より高い特定の範囲内で徐々に変化させてもよい。上記範囲を逸脱しない範囲で、公知の様々な過熱方法が使用できる。

## 【0045】

さらに望ましくは、炭素コーティング層の形成を促進するためには、前記加熱段階の温度は少なくとも約150 であることが好ましい。

## 【0046】

通常、加熱段階の温度を上昇させるほど、炭素コーティング層の形成速度が速くなる。しかしながら、ある程度以上の温度では、前記炭素コーティング層の形成速度は上がらず、逆に反応物質の変質が発生する場合もある。このような点を考慮すると、前記加熱段階の温度は約350 を超過しないように調節することが好ましい。

10

## 【0047】

本発明の方法は、開放された反応容器または密閉された反応容器などいずれの反応容器を利用して実施されてもよいが、前記加熱段階の温度をポリオールの沸騰点以上の温度に上昇させるために密閉された反応容器を利用することがさらに望ましい。本発明の実施のために利用される反応容器は、開放されてもまたは密閉された反応容器であっても、凝縮器または、還流冷却装置、還流凝縮器を備えていてもよい。

## 【0048】

還流冷却装置を備えた開放型反応容器を使用する本発明の方法の一実施態様においては、炭素コーティング層の形成のために前記原料分散液を加熱する段階での前記原料分散液の加熱温度は使われるポリオールの沸点付近であることがさらに望ましい。この場合には、前記原料分散液の温度がポリオールの沸点より低すぎると、炭素コーティング層の形成が不十分に起きる可能性があり、逆に前記温度がポリオールの沸点より高過ぎると、高圧型反応容器を使用しなければならない場合がある。このような点を考慮すると、前記原料分散液の温度は、使われる有機溶媒の沸点 $\pm 5$  の範囲であることが好ましい。さらに望ましくは、原料分散液の前記有機溶媒が沸騰する状態になるように、原料分散液を加熱する。

20

## 【0049】

炭素コーティング層の形成のための原料分散液を加熱する時間は、本発明で特別に限定されない。実質的に全量のニッケル金属粒子が炭素でコーティングされるのに十分に加熱時間であればよい。このような加熱時間は、具体的な反応条件によって容易に決定される。

30

## 【0050】

以下、本発明で提供する導電性ペーストを詳細に説明する。

## 【0051】

本発明の導電性ペーストは、本発明の炭素含有ニッケル粒子粉末（例えば、炭素でコーティングされたニッケル粒子粉末）、有機バインダ及び有機溶媒を含む。前記炭素でコーティングされたニッケル粒子粉末としては、本発明の炭素でコーティングされたニッケル粒子粉末が使われる。前記有機バインダとしては、特に制限されず、公知の有機バインダが使用でき、例えば、エチルセルロースなどが好ましく使われうる。また、有機溶媒としては、特に制限されず、公知の有機溶媒が使用できるが、テルピネオール、ジヒドロキシテルピネオール、1-オクタノールケロシンなどが好ましく使われうる。

40

## 【0052】

本発明の導電性ペーストの組成は、特に制限されず、公知と同様の組成が使用できるが、例えば、約40質量%の炭素でコーティングされたニッケル粒子粉末、約15質量%の有機バインダ、及び約45質量%の有機溶媒の組成が好ましく使用される。しかしながら、このような組成は例に過ぎず、使用しようとする用途に応じて、多様な組成を使用できる。

50

## 【 0 0 5 3 】

また、本発明の導電性ペーストは、例えば、可塑剤、増粘防止剤、分散剤などの添加剤をさらに含んでもよい。本発明の導電性ペーストを製造する方法は、特に制限されず、公知の多様な方法が使われるため、ここではそれ以上詳細に説明しない。

## 【 0 0 5 4 】

本発明の導電性ペーストは、種々の用途に使用でき、例えば、ニッケル内部電極を含む M L C C、L T C C 用電極、ペイント添加剤、C N T 成長用触媒、水素貯蔵用材料、化学反応を促進するための触媒の製造などに適用されうる。

## 【 実施例 】

## 【 0 0 5 5 】

以下、実施例を通じて本発明をさらに詳細に説明する。しかしながら、本発明の技術的思想が下記の実施例に制限されるものではない。

## 【 0 0 5 6 】

## 実施例 1

東邦社製の N F 1 A (商品名) ニッケル金属粉末 1 0 0 g を、1 リットルのジエチレングリコールに添加、分散して、原料分散液を製造した。前記分散液を還流冷却装置を備えた反応器に投入した後、ジエチレングリコールが沸騰するまで加熱した。この時の前記分散液の温度は約 2 2 0 であった。また、分散液の加熱時間は約 6 時間であった。

## 【 0 0 5 7 】

得られた炭素含有ニッケル粒子粉末の炭素含有量は約 5 . 5 質量%であった。図 1 及び図 2 に示されるように、炭素含有ニッケル粒子粉末の製造過程中、ニッケル粒子は凝集体を形成しておらず、原料として使われたニッケル金属粉末の始めの分散度を維持した。図 1 及び図 2 は、原料として使われたニッケル金属粉末と、これより製造された炭素含有ニッケル粒子粉末の S E M 写真をそれぞれ示す。このような図 1 及び図 2 の S E M 写真から炭素含有ニッケル粒子粉末は製造過程で凝集体を形成しておらず、原料として使われたニッケル金属粉末の初期の分散度を維持することが分かる。

## 【 0 0 5 8 】

図 4 は、本実施例で得られた炭素含有ニッケル粒子の T E M 写真である。図 4 から、炭素含有ニッケル粒子に約 5 . 5 n m の表面層が形成されていることが分かる。この表面層は主に炭素よりなるものと見なされる。

## 【 0 0 5 9 】

## 実施例 2

東邦社製の N F 1 A (商品名) ニッケル金属粉末 1 0 0 g を、1 リットルのジエチレングリコールに添加、分散して、原料分散液を製造した。前記分散液を還流冷却装置を備えた反応器に投入した後、ジエチレングリコールが沸騰するまで加熱した。この時の前記分散液の温度は約 2 2 0 であった。また、分散液の加熱時間は約 2 時間であった。

## 【 0 0 6 0 】

得られた炭素含有ニッケル粒子粉末の炭素含有量は約 0 . 9 6 質量%であった。炭素含有ニッケル粒子粉末の製造過程中、ニッケル粒子は凝集体を形成せず、原料として使われたニッケル金属粉末の初期の分散度を維持した。

## 【 0 0 6 1 】

## 実施例 3

東邦社製の N F 1 A (商品名) ニッケル金属粉末 5 0 g を、1 リットルのジエチレングリコールに分散させて原料分散液を製造した。前記分散液を還流冷却装置が具備された反応器に添加、分散して、原料分散液を製造した。前記分散液を還流冷却装置を備えた反応器に投入した後、ジエチレングリコールが沸騰するまで加熱した。この時の前記分散液の温度は約 2 2 0 であった。また、分散液の加熱時間は約 2 時間であった。

## 【 0 0 6 2 】

得られた炭素含有ニッケル粒子粉末の炭素含有量は約 1 . 1 6 質量%であった。炭素含有ニッケル粒子粉末の製造過程中、ニッケル粒子は凝集体を形成せず、原料として使われ

10

20

30

40

50

たニッケル金属粉末の初期の分散度を維持した。

【0063】

比較例 1

東邦社製の商品名 N F 1 A (商品名) ニッケル金属粉末をそのまま使用した。

【0064】

比較例 2

東邦社製の商品名 N I 6 0 9 S (商品名) ニッケル金属粉末をそのまま使用した。

【0065】

比較例 3

東邦社製の N F 1 A ニッケル (商品名) 金属粉末 1 0 0 g を、1 リットルのエチレングリコールに添加、分散して、原料分散液を製造した。前記分散液を還流冷却装置を備えた反応器に投入した後、エチレングリコールが沸騰するまで加熱した。この時の前記分散液の温度は約 2 2 0 であった。また、分散液の加熱時間は約 2 4 時間であった。

【0066】

実験例：収縮率の測定実験

原料として使われた比較例 1 のニッケル金属粉末と実施例 1 で得られた炭素含有ニッケル粒子粉末とを、金型を利用して直径 5 mm、高さ 4 mm の成形体を作製した。各成形体の温度に対する収縮率を、熱変形測定器 (dilatometer) をを用いて測定した。図 3 は、2 つのニッケル粉末から製造された成形体の収縮特性グラフを示すものである。図 3 から示されるように、炭素を含まないニッケル金属粉末の場合 (比較例 1) には、約 2 0 0 という低温から収縮が発生する一方、本発明による実施例 1 のニッケル粒子粉末の場合には、約 9 0 0 程度の高温で収縮が発生することが分かる。

【0067】

同様に、実施例 2 及び 3、比較例 2 及び 3 に対しても、上記と同じ方法で成形体を作製し、これら成形体についても、温度に対する収縮率を測定して、その結果を図 5 に示す。図 5 から明らかなように、本発明の実施例 2 による炭素含有ニッケル粒子粉末を使用して得られた成形体の場合には、9 3 1 の温度で収縮が開始し、実施例 3 による炭素含有ニッケル粉末を使用して得られた成形体の場合には、1, 0 0 7 の温度で収縮が開始した。これに対して、比較例 2 の場合には、2 0 5 という低温で収縮が発生し始め、比較例 3 の場合には、これよりさらに低い 1 8 6 で収縮が発生し始めることが分かる。

【産業上の利用可能性】

【0068】

本発明の炭素含有ニッケル粒子粉末は、凝集体形成度が極めて抑制されており、焼成時の収縮特性が極めて向上しているため、特に、MLCC の内部電極の形成材料などとして極めて有用である。

【図面の簡単な説明】

【0069】

【図 1】原料として使われたニッケル金属粒子粉末の SEM 写真である。

【図 2】ニッケル金属粒子を原料として使用して製造した炭素含有ニッケル粒子粉末の SEM 写真である。

【図 3】本発明の実施例 1 による炭素含有ニッケル粒子粉末と、比較例として炭素を含有していないニッケル金属粒子の焼成時の温度に対する収縮率を示すグラフである。

【図 4】本発明の実施例 1 で製造された炭素含有ニッケル粒子粉末の TEM 写真である。

【図 5】本発明の実施例 2 及び 3 と比較例 2 及び 3 で製造したニッケル粒子粉末の温度に対する収縮率を示すグラフである。

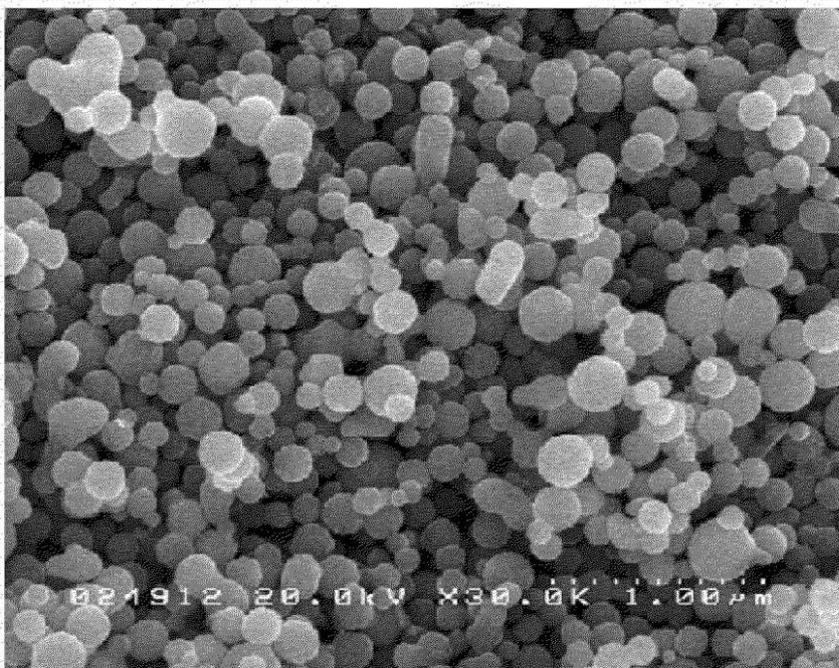
10

20

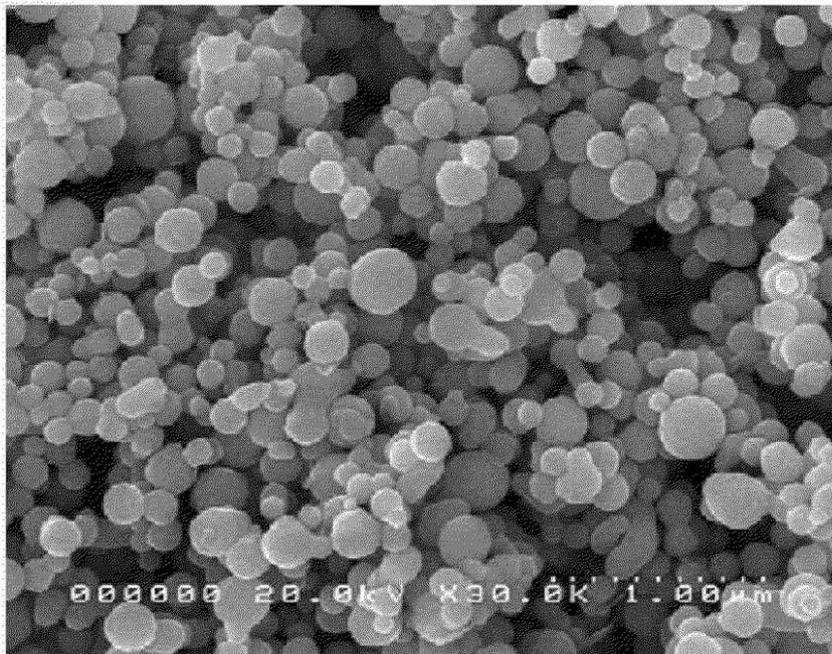
30

40

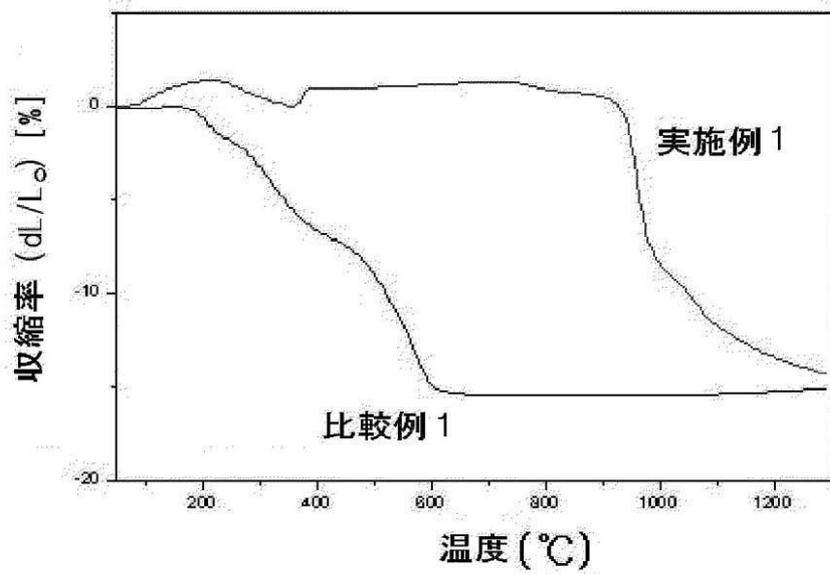
【図1】



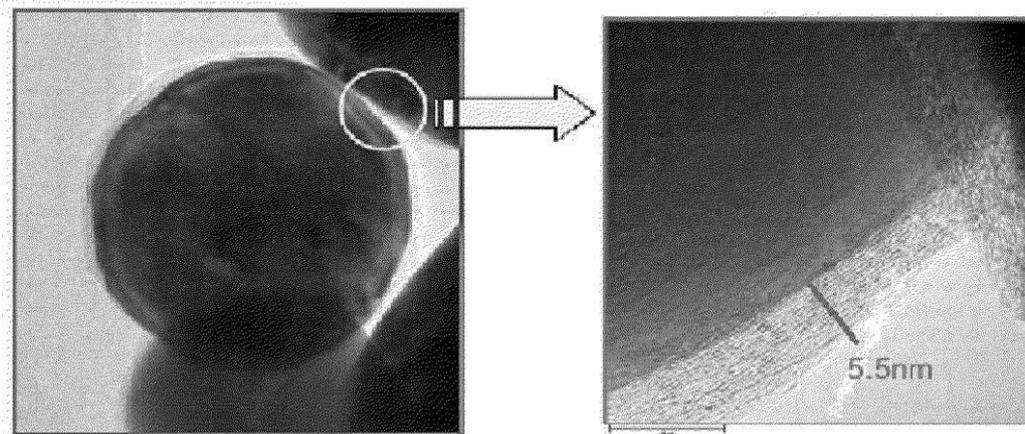
【図2】



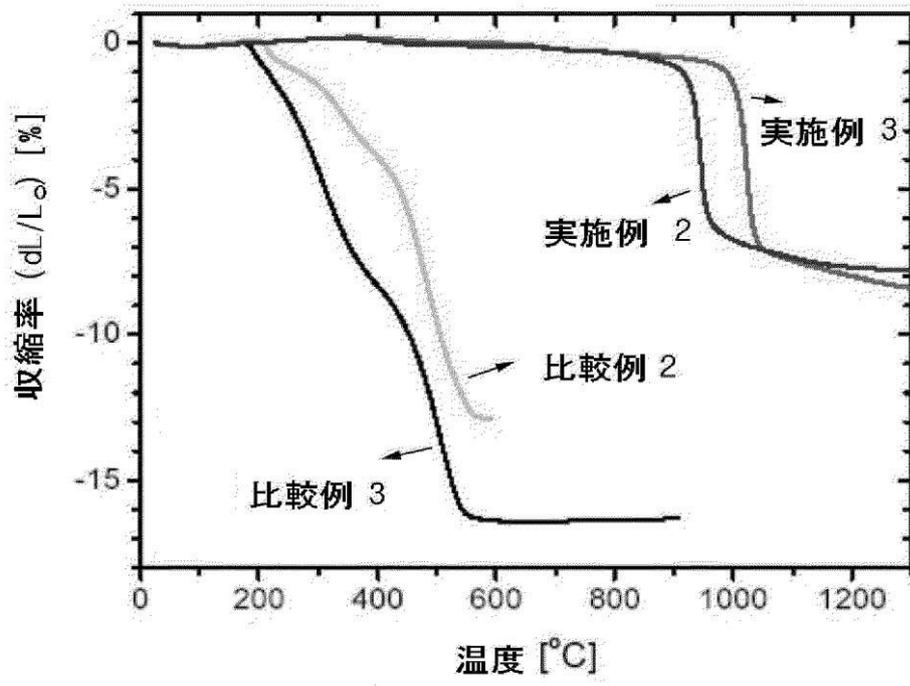
【 図 3 】



【 図 4 】



【 図 5 】



## フロントページの続き

(51)Int.Cl. <sup>7</sup>	F I	テーマコード(参考)
H 0 1 B 1/22	H 0 1 B 1/22 A	5 G 3 0 7
H 0 1 B 5/00	H 0 1 B 5/00 E	
H 0 1 B 13/00	H 0 1 B 5/00 F	
H 0 1 G 4/12	H 0 1 B 13/00 5 0 1 Z	
H 0 1 G 4/30	H 0 1 G 4/12 3 6 1	
	H 0 1 G 4/30 3 0 1 C	

(72)発明者 崔 在 榮

大韓民国京畿道水原市靈通区靈通洞 9 5 5 - 1 番地 鳳谷マウル住公 1 団地アパート 1 5 5 棟 8 0 2 号

(72)発明者 金 純 こう

大韓民国ソウル特別市城東区金湖洞 3 街 1 3 3 1 番地 斗山アパート 1 1 4 棟 2 0 1 号

(72)発明者 金 泰 慶

大韓民国京畿道水原市靈通区靈通洞 1 0 1 9 - 1 5 番地 3 0 5 号

(72)発明者 李 學 俊

大韓民国京畿道水原市靈通区靈通洞 1 0 4 6 - 1 番地 三星アパート 4 3 9 棟 7 0 2 号

(72)発明者 尹 善 美

大韓民国京畿道龍仁市器興邑農書里山 1 4 - 1 番地 三星綜合技術院内

F ターム(参考) 4K017 AA04 BA03 BB18 DA08 EJ02

4K018 BA04 BB05 BC28 BD04

5E001 AB03 AC09 AJ01

5E082 AB03 EE04 EE23 EE28 EE35 LL01 PP03 PP06

5G301 DA10 DA18 DA42 DD01

5G307 AA02