



[12] 发明专利说明书

专利号 ZL 02147087.1

[45] 授权公告日 2006 年 11 月 29 日

[11] 授权公告号 CN 1287640C

[22] 申请日 2002.10.29 [21] 申请号 02147087.1

[30] 优先权

[32] 2001.10.29 [33] JP [31] 331588/2001

[32] 2002.5.24 [33] JP [31] 151043/2002

[71] 专利权人 威斯特姆公司

地址 加拿大阿尔伯塔

[72] 发明人 斎田良夫 萩原淳 白川幸彦

薄田真人

审查员 刘秀艳

[74] 专利代理机构 中国国际贸易促进委员会专利
商标事务所

代理人 李德山

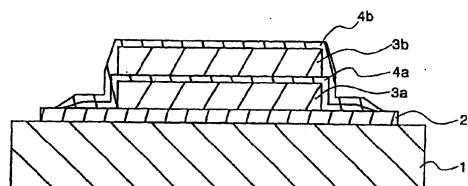
权利要求书 2 页 说明书 24 页 附图 11 页

[54] 发明名称

复合基片和使用它的 EL 面板、及其制造方法

[57] 摘要

本发明提供一种复合基片，至少具有基片、在该基片上形成的电极、以及通过用厚膜法烘烤粉末状的绝缘材料而在该电极上形成的厚膜电介质层即第 1 电介质层，在上述第 1 电介质层上、以及在第 1 电介质层的下部和/或第 1 电介质层之间形成有通过溶液涂敷烘烤法形成的第 2 电介质层。根据本发明的复合基片，能确保厚膜电介质层的绝缘性，而且由薄膜制成的发光层等的功能性薄膜能够稳定工作，特别是可以稳定发光。



1. 一种复合基片，至少具有基片、在该基片上形成的电极、在该电极上形成的厚膜电介质的多个第1电介质层、以及通过溶液涂敷烘烤法在上述第1电介质层的下面或上述第1电介质层之间形成的第2电介质层。

2. 根据权利要求1所述的复合基片，其特征在于，通过中间介入第1电介质层而形成有多层用上述溶液涂敷烘烤法形成的第2电介质层，该用溶液涂敷烘烤法形成的第2电介质层总计为2~5层。

3. 一种电致发光面板，其特征在于，在权利要求1或2所述的复合基片的、第1电介质层上的用溶液涂敷烘烤法形成的第2电介质层上，至少具有发光层和其它电极层。

4. 一种复合基片的制造方法，它是至少具有基片、在该基片上形成的电极、以及在该电极上形成的厚膜电介质的多个第1电介质层的复合基片的制造方法，其特征在于，

在第1电介质层的下面或第1电介质层之间用溶液涂敷烘烤法形成第2电介质层。

5. 一种电致发光元件的制造方法，该电致发光元件具备：具有电绝缘性的基片、在该基片上具有图案的第1电极层、至少被覆上述第1电极层的一部分的电介质层，在该电介质层上至少顺次层叠发光层和第2电极层，所述电介质层具有厚膜的第1电介质层、以及用溶液涂敷烘烤法形成的第2电介质层的多层构造，其特征在于，

在形成有上述第1电极层的基片与第1电介质层之间的至少第1电极层上配置缓冲层，然后形成第1电介质层。

6. 根据权利要求5所述的电致发光元件的制造方法，其特征在于，上述缓冲层由通过烘烤而与第1电介质层材料固溶为一体的材料形成。

7. 根据权利要求5或6所述的电致发光元件的制造方法，其特征在于，上述缓冲层由氧化钽或钛酸钡形成。

8. 一种电致发光元件，其特征在于，它是用权利要求 5~7 中任意一项所述的方法制造的。

9. 根据权利要求 8 所述的电致发光元件，其特征在于，缓冲层和第 1 电介质层的至少一部分彼此固溶为一体。

复合基片和使用它的 EL 面板、及其制造方法

技术领域

本发明涉及用于发光显示装置和面光源的复合基片及其制造方法，特别是涉及将交流驱动型 EL 元件的高介电常数的陶瓷层用于绝缘层的 EL 面板。

背景技术

现在正在使 EL 元件作为液晶显示器（LCD）和时钟的后照光源进行实用化。

EL 元件是应用通过加上电场使物质发光的现象，即，电致发光（EL）现象的元件。

在 EL 元件中，存在着将粉末发光体分散在有机物和珐琅上，具有上下设置电极层的构造的分散型 EL 元件，和用以在电绝缘性的基片上夹在 2 个电极层和 2 个薄膜绝缘体之间的形式形成的薄膜发光体的薄膜型 EL 元件。另外，对于这些 EL 元件，存在直流电压驱动型，交流电压驱动型两种驱动方式。分散型 EL 元件是很早就为大家知道的，具有容易制造的优点，但是因为亮度低寿命也短所以限制了它的利用。另一方面，薄膜型 EL 元件因为具有高亮度，长寿命的特性所以近年来得到广泛的应用。

图 19 表示以已有的薄膜型 EL 元件为代表的 2 重绝缘型薄膜 EL 元件的构造。这种薄膜 EL 元件是在用于液晶显示器和 PDP 等的蓝色玻璃片等的透明基片 21 上，层叠由膜厚约为 $0.2\mu\text{m} \sim 1\mu\text{m}$ 的 ITO 等构成的形成所定的带状图案的透明电极层 22，薄膜透明第 1 绝缘体层 23，膜厚约为 $0.2\mu\text{m} \sim 1\mu\text{m}$ 的发光层 24 和薄膜第 2 绝缘体层 25，而且，形成与上述透明电极层 22 正交地做成带状图案的 Al 薄膜等的金属电极层 26。而且，通过透明电极层 22 和金属电极层 26 的矩阵上在选出

的特定的发光体上选择地加上来自电源 30 的电压，使特定象素的发光体发光，从基片 21 一侧取出该发光。这样的薄膜绝缘体层 23, 25 具有限制流过发光层 24 内的电流的功能，起着可以抑制薄膜 EL 元件的绝缘破坏，得到稳定的发光特性的作用。因此，这种构造的薄膜 EL 元件在商业上得到广泛的实际应用。

但是，在这种薄膜 EL 元件上，仍然残存着应该解决的构造上的问题。即，当用薄膜形成绝缘体层，制成大面积的显示器时，存在着很难使由于透明电极的图案边缘的段差部分和制造工序中发生的尘埃等引起的薄膜绝缘体的缺陷完全没有，由于局部的绝缘耐压降低产生发光层的破坏那样的问题。因为这种缺陷对于显示器件来说是致命的问题，所以薄膜 EL 元件与液晶显示器和等离子体显示器比较，在作为大面积显示器广泛实际应用方面具有很大的障碍。

为了解决这种薄膜绝缘体的产生缺陷的问题，日本平成 7 年公布的 7-44072 号专利公报中揭示了用电绝缘性的陶瓷基片作为基片，代替发光体下部的薄膜绝缘体用厚膜电介质的 EL 元件。该文献揭示的 EL 元件，与已有的薄膜 EL 元件的构造不同，因为从与基片相反的上部侧取出发光体的发光，所以在上部构成透明电极层。

另外，在该薄膜 EL 元件上形成厚膜电介质层，它的厚度为数 10~数 $100\mu\text{m}$ ，是薄膜绝缘体层厚度的数 100~数 1000 倍。因此，由于电极段差和制造工序中的尘埃等形成的针孔引起的初期工作时的绝缘破坏变得非常少。可是，产生了由于用这种厚膜电介质层，加在发光层上的有效电压降低那样的问题，但是例如在上述的日本平成 7 年公布的 7-44072 号专利公报中通过将复合钙钛矿高介电常数材料用于绝缘体层改善了该问题。

但是，在厚膜电介质层上形成的发光层为数 100nm 厚，厚度只有厚膜电介质层的 $1/100$ 左右。因此，必须使厚膜电介质层的表面平滑到发光层厚度以下的程度，但是要使由通常的厚膜工序制作的电介质表面十分平滑是困难的。

即，厚膜电介质层本质上是用粉体原料的陶瓷构成的。因此，当

为了致密进行烧结时通常产生约 30~40% 的体积收缩。可是，与通常的陶瓷烧结时 3 维地体积收缩致密化的情形相对，在基片上形成的厚膜陶瓷，因为受到基片的拘束，所以不能在基片的面内方向收缩，只是在厚度方向 1 维地进行体积收缩。因此，厚膜电介质层的烧结仍然不充分，本质上成为多孔质体。而且，厚膜的表面粗糙度因为不在多晶烧结体的晶粒大小以下，所以它的表面成为亚微米大小以上的凹凸形状。

在这样的电介质层表面上，不能均匀地形成用蒸涂法和溅射法等的气相堆积法形成的发光层。而且，存在着在该不均匀的发光层部分上不能有效地加上电场，使有效发光面积减少，由于膜厚的局部不均匀性使发光层产生部分绝缘破坏，发光亮度降低那样的问题。而且，存在着因为膜厚在局部有大的变动，所以加在发光层上的电场强度局部地有很大的零散，不能得到明确的发光电压阈值那样的问题。

为了解决这种问题，例如在日本平成 7 年公布的 7-50197 号专利公报中揭示了在由铌酸铅构成的厚膜电介质表面上层叠用溶胶凝胶法形成的钛酸锆酸铅等的高电介常数层，改善表面平坦性的方法。即，如图 20 所示，在基片 11 上形成电极 12，形成厚膜电介质层 13 后，形成用溶胶凝胶法形成的钛酸锆酸铅等的平坦层 14，改善表面平坦性。

但是，当在作为具有数 10~数 100 μm 厚度的多孔质体的厚膜电介质层表面上，形成平坦化层时，在平坦化层上发生微小的裂纹。发生裂纹的部分因为绝缘性降低要长时期地进行稳定工作是困难的。

而且，上述厚膜电介质层具有局部地产生上述表面粗糙度以上的凹凸不平的情形，存在着当产生这样大的凹凸不平时，难以用溶胶凝胶层实现完全的平坦化那样的问题。

即，当通过烘烤用溶胶凝胶法制成的 PZT 等使具有这样的局部凹凸不匀的厚膜平坦化时，平坦化后的表面粗糙度发生很大的零散。也存在着这种表面粗糙度的零散引起 EL 发光时低亮度的发光不均匀，当低亮度的发光不均匀显著时，在平坦化层上发生裂纹的情形。裂纹

成为称为亮点的异常发光的原因，无论在哪种情形都成为产生发光不均匀的主要因素。

发明内容

本发明的目的是提供确保厚膜电介质层的绝缘性，而且由薄膜制成的发光层等的功能性薄膜可以稳定工作，特别是可以稳定发光的复合基片和 EL 面板及其制造方法。

为此，本发明提供在用溶胶凝胶电介质层确保厚膜陶瓷电介质层的表面平坦性的 EL 元件中，制造稳定性高，没有元件驱动时的 EL 发光不均匀的 EL 元件的制造方法和 EL 元件。

为了实现上述目的，本发明提供一种复合基片，至少具有基片、在该基片上形成的电极、在该电极上形成的厚膜电介质的多个第 1 电介质层、以及通过溶液涂敷烘烤法在上述第 1 电介质层的下面或上述第 1 电介质层之间形成的第 2 电介质层。

更好是，通过中间介入第 1 电介质层而形成有多层用上述溶液涂敷烘烤法形成的第 2 电介质层，这种用溶液涂敷烘烤法形成的第 2 电介质层总计为 2~5 层。

另外，本发明提供一种电致发光面板，其特征在于，在权利要求 1 或 2 所述的复合基片的、第 1 电介质层上的用溶液涂敷烘烤法形成的第 2 电介质层上，至少具有发光层和其它电极层。

另外，本发明提供一种复合基片的制造方法，它是至少具有基片、在该基片上形成的电极、以及在该电极上形成的厚膜电介质的多个第 1 电介质层的复合基片的制造方法，其特征在于，在第 1 电介质层的下面或第 1 电介质层之间用溶液涂敷烘烤法形成第 2 电介质层。

另外，本发明提供一种电致发光元件的制造方法，该电致发光元件具备：具有电绝缘性的基片、在该基片上具有图案的第 1 电极层、至少被覆上述第 1 电极层的一部分的电介质层，在该电介质层上至少顺次层叠发光层和第 2 电极层，所述电介质层具有厚膜的第 1 电介质层、以及用溶液涂敷烘烤法形成的第 2 电介质层的多层构造，其特征

在于，在形成有上述第 1 电极层的基片与第 1 电介质层之间的至少第 1 电极层上配置缓冲层，然后形成第 1 电介质层。

更好是，上述缓冲层由通过烘烤而与第 1 电介质层材料固溶为一体的材料形成。

更好是，上述缓冲层由钽氧化物或钛酸钡形成。

另外，本发明提供一种电致发光元件，它是用上述任意一种电致发光元件的制造方法制造的。

更好是，缓冲层和第 1 电介质层的至少一部分彼此固溶为一体。

另外，本发明还可以采用以下方案：

(1) 至少具有基片，在该基片上形成的电极，和作为在该电极上形成的厚膜电介质的第 1 电介质层，

形成上述第 1 电介质层，和在第 1 电介质层的下部和/或第 1 电介质层之间用溶液涂敷烘烤法形成的第 2 电介质层的复合基片。

(2) 通过在用上述溶液涂敷烘烤法形成的第 2 电介质层之间介入第 1 电介质层形成多层，这种用溶液涂敷烘烤法形成的第 2 电介质层总计为 2~5 层的上述 (1) 的复合基片。

(3) 在上述 (1) 或 (2) 的复合基片的第 1 电介质层上的用溶液涂敷烘烤法形成的第 2 电介质层上至少具有发光层和其它电极层的 EL 面板。

(4) 至少具有基片，在该基片上形成的电极，和作为在该电极上形成的厚膜电介质的第 1 电介质层的复合基片的制造方法，和

在上述第 1 厚膜电介质层上，在第 1 电介质层的下部和/或第 1 电介质层之间用溶液涂敷烘烤法形成第 2 电介质层的复合基片的制造方法。

(5) 具有电绝缘性的基片，在该基片上具有图案的第 1 电极层，至少被覆上述第 1 电极层的一部分的电介质层，在该电介质层上至少

顺次层叠发光层和第2电极层，上述电介质层具有是厚膜的第1电介质层和用溶液涂敷烘烤法形成的第2电介质层的多层构造的EL元件的制造方法，和

在形成上述第1电极层的基片和第1电介质层之间的至少第1电极层上配置缓冲层，然后形成第1电介质层的EL元件的制造方法。

(6) 由通过烘烤与第1电介质层材料固熔在一起成为一体的材料形成上述缓冲层的上述(5)的EL元件的制造方法。

(7) 由钽氧化物或钛酸钡形成上述缓冲层的上述(5)或(6)的EL元件的制造方法。

(8) 用上述(5)~(7)中的任何一种方法制造的EL元件。

(9) 使缓冲层和第1电介质层的至少一部分固熔在一起成为一体的上述(8)的EL元件。

本发明者们对厚膜电介质层的凹凸不平的发生原因进行了研讨，结果明白了对于在内部电极上形成烧结PMN-PT等的粉末的高介电常数的厚膜电介质层的构造，在内部电极图案上和在不存在内部电极的间隙部分的基片陶瓷上，厚膜电介质层的烧结举动是不同的，结果发生烧结密度上的差别，特别是在金属电极上容易发生厚膜电介质层的烧结密度的不均匀。而且，明白了作为这种现象的结果，特别在电极图案上和非电极部分(间隙部分)的边界附近(电极端部)上的厚膜和除此以外的电极上的厚膜上发生这种烧结密度的不均匀。因此，烧结后在厚膜电介质层的表面上产生大的凹凸不平。

而且，在该表面上涂敷，烘烤用溶胶凝胶法制成的PZT等，并进行平坦化时，在平坦化处理后的PZT表面的粗糙度上产生很大的零散。该表面粗糙度的零散形成EL发光时低亮度的发光不均匀。而且，当零散显著时，在PZT上产生裂纹，成为称为亮点的异常发光的原因，在无论在哪种情形中都成为产生发光不均匀的主要因素。

而且，作为防止发生这样的凹凸不平的方法，在内部电极和PMN-PT等的多孔质的烧结体之间，例如通过夹入一层薄膜缓冲层，能够密度均匀地烘烤烧结PMN-PT等的粉末得到的高介电常数的陶

瓷绝缘层。结果，当烘烤 PZT 等并进行平坦化时，使 PZT 的厚度零散变小，能够防止 EL 发光不均匀。另外，也能够抑制裂纹的发生。

附图说明

图 1 是表示本发明的复合基片的实施形态的概略截面图。

图 2 是表示本发明的 EL 面板的实施形态的概略截面图。

图 3 是表示根据本发明方法制作的 EL 元件的基本构成的部分概略截面图。

图 4 是表示根据本发明方法制作的 EL 元件的其它基本构成的部分概略截面图。

图 5 是表示本发明的 EL 元件的一个制造工序的概略截面图。

图 6 是表示本发明的 EL 元件的一个制造工序的概略截面图。

图 7 是表示本发明的 EL 元件的一个制造工序的概略截面图。

图 8 是表示本发明的 EL 元件的一个制造工序的概略截面图。

图 9 是表示实施例 A-1 的结果的驱动时间与 L/L_0 的关系的曲线图。

图 10 是表示用薄膜形成本发明样品 B-1 的缓冲层后的截面状态的代替图面的照片。

图 11 是表示在形成，烘烤本发明样品 B-1 的厚膜电介质层后的截面状态的代替图面的照片。

图 12 是拍摄附有比较样品的 PZT 电介质层（平坦化层）的基片的表面的代替图面的照片。

图 13 是拍摄实施例的本发明样品的发光状态的代替图面的照片。

图 14 是拍摄实施例的比较样品的发光状态的代替图面的照片。

图 15 是拍摄实施例的比较样品的发光状态的代替图面的照片。

图 16 是表示比较样品 B-2 与本发明样品 B-1 的 L-V 特性的曲线图。

图 17 是表示比较样品 B-1, B-2 与本发明样品 B-2 的 L-V 特性的曲线图。

图 18 是表示比较样品 B-2 与本发明样品 B-3 的 L-V 特性的曲线图。

图 19 是表示已有的 EL 元件的构成例的概略截面图。

图 20 是表示已有的 EL 元件的构成例的概略截面图。

具体实施方式

本发明的复合基片至少具有基片，在该基片上形成的电极，在该电极上形成的厚膜电介质层，在该厚膜电介质层上用溶液涂敷烘烤法形成的电介质层，上述厚膜电介质层和用溶液涂敷烘烤法形成的电介质层分别交错重叠地形成多层。

这样，通过在厚膜电介质层的基底和厚膜电介质层与厚膜电介质层之间，具有用溶液涂敷烘烤法形成的致密的电介质层，能够确保厚膜电介质层的绝缘性，当在它上面形成发光层等的功能性薄膜时，能够得到长时期的稳定工作和发光。即，能够使加在内部电极和发光层等的薄膜之间的电压稳定化，结果使元件稳定从而提高了可靠性。

在厚膜电介质层上，涂敷电介质材料溶液，由于毛细管现象等电介质材料溶液染入作为基底的厚膜电介质层上部的某个深度，充填在染入区域的厚膜电介质层的晶粒之间。通过然后的烘烤，虽然由于电介质材料溶液的有机物成分被燃烧氧化而体积收缩，但是通过将用溶液涂敷烘烤法形成的电介质埋入厚膜电介质层的晶粒内的一部分，在厚膜电介质层上部直到某个深度形成密度高的区域。所以，如果根据本发明，则在厚膜电介质层上用溶液涂敷烘烤法形成致密的电介质层时，同时持有由于上述现象使基底厚膜电介质层的上部区域高密度化的效果，这是不言而喻的。

即，在厚膜电介质层上形成用溶液涂敷烘烤法形成的电介质时，通过调整电介质材料溶液的粘度或涂敷量，能够以埋入厚膜电介质层的晶粒之间的程度形成该电介质。这时，没有形成明确的层构造，但是通过在厚膜电介质层上用溶液涂敷烘烤法形成电介质，使厚膜电介质层高密度化，能够得到本发明的效果。所以，在本发明定义的用溶

液涂敷烘烤法得到的电介质层中，也包含这样地与厚膜电介质层成为一体的电介质。

对于厚膜电介质层和用溶液涂敷烘烤法形成的电介质层的复合层叠体，上述复合层叠体的层数越多，就越能很好地确保稳定性。但是，用溶液涂敷烘烤法形成的电介质层的层数变多时，工序上变得很烦杂，使制品的成本提高。因此，作为最佳的层数是2~5层，特别是2~3层。

本发明的复合基片，最好具有例如如图1所示的构造。即，是由在具有电绝缘性的基片1上，形成所定图案的下部电极层2，在它上面的厚膜电介质层3a，3b和用溶液涂敷烧成法形成的电介质层4a，4b构成的层叠层。此外，虽然在图示的例子中没有显示出来，但是用溶液涂敷烘烤法形成的电介质层也可以形成在厚膜电介质层3a的下面。

基片具有电绝缘性，在它上面形成的下部电极层，如果不污染电介质层，能够维持所定的耐热强度则对它没有特别的限定。

作为具体的材料，也可以用氧化铝(Al_2O_3)，石英玻璃(SiO_2)，氧化镁(MgO)，镁橄榄石($2MgO\bullet SiO_2$)，冻石($MgO\bullet SiO_2$)，多铝红柱石($3Al_2O_3\bullet 2SiO_2$)，氧化铍(BeO)，氧化锆(ZrO_2)，氮化铝(AlN)，氮化硅(SiN)，碳化硅(SiC)等的陶瓷基片，结晶化玻璃和高耐热玻璃等，又也可以使用经过珐琅处理的金属基片等。

当将显示装置做成单纯的矩阵型时，具有许多带状的图案那样地形成下部电极层。另外，因为它的线宽成为1个象素的宽度，线间的间隙成为非发光区域，所以最好尽量使线间的间隙小。具体地说，根据作为目的的显示器的图象分辨率，例如线宽约为 $200\sim 500\mu m$ ，间隙约为 $20\sim 50\mu m$ 是必要的。

作为下部电极层的材料，最好用能够得到高的导电性，并且当形成电介质层时不会受到损伤，进一步电介质层与发光层的反应性低的材料。作为这样的下部电极层材料，最好用Au，Pt，Pd，Ir，Ag等

的贵金属和 Au-Pd, Au-Pt, Ag-Pd, Ag-Pt 等的贵金属合金和 Ag-Pd-Cu 等的以贵金属为主要成分添加贱金属元素的电极材料, 因为它们容易得到对于烘烤电介质层时的氧化气氛的耐氧化性。另外, 也可以用 ITO 和 SnO_2 (透明导电膜), ZnO-Al 等的氧化物导电性材料, 而且, 也能够用 Ni, Cu 等的贱金属, 将烘烤电介质层时的氧气分压设定在不使这些贱金属氧化的范围内。

作为形成下部电极层的方法, 最好用溅射法, 蒸涂法, 电镀法等众所周知的技术。

另外, 可以用由称为金液 (液金, 树脂酸金, 亮金) 的材料形成的物体。这种称为金液, 水金的材料是具有将金溶入萜系的溶剂中的有机金属化合物的形式, 通常含有约 4~25% 的金, 褐色有粘性的液体。通过用这种金液, 能够得到 50~500nm 极薄的致密的金膜。

这种金液因为可溶于萜, 能够自由调制粘度, 所以能够用喷涂法, 网印法等各种涂敷, 印刷法形成电极图案。

涂敷的金液, 干燥后, 通过约 $450\sim 850^{\circ}\text{C}$ 的加热处理, 形成金的配线图案。

厚膜电介质层必须是高介电常数并且高耐压的, 进一步考虑到基片的耐热性, 要求是可以低温烧制的物质。

在此, 厚膜电介质层是用所谓的厚膜法, 烘烤 (烧制) 粉末状的绝缘材料形成的陶瓷层。这种厚膜电介质层, 例如, 能够在形成下部电极层的基片上, 将粘合剂与溶媒混合起来制成的绝缘体糊剂印刷在粉末状的绝缘材料上进行烘烤 (烧制) 形成。另外, 也可以通过浇铸绝缘体糊剂形成薄膜, 形成并层叠原料片。

烘烤前进行的脱粘合剂处理的条件最好是通常的条件。

最好与下部电极材料的种类相应地适当决定烘烤时的气氛, 但是当在氧化性气氛中进行烘烤时, 最好是在通常的大气中进行烘烤。

最好与厚膜电介质层的材料相应地适当决定烘烤温度, 但是通常, 约 $700\sim 1200^{\circ}\text{C}$, 最好在 1000°C 以下。烘烤 (烧制) 时间为 0.05~5 小时, 特别最好为 0.1~3 小时。

另外，需要时也可以实施退火处理。

为了排除由于电极段差和制造工序中的尘埃等形成的针孔，需要厚膜电介质层的膜厚足够厚，层叠层全体的厚膜电介质层的总计至少为 $10\mu\text{m}$ 以上，最好约为 $15\sim20\mu\text{m}$ 。

作为厚膜电介质层的材料，希望是考虑到基片材料耐热性的制约，可以低温形成的高介电常数陶瓷组成。

例如具有 BaTiO_3 , $(\text{Ba}_x\text{Ca}_{1-x})\text{TiO}_3$, $(\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x})\text{TiO}_3$, PbTiO_3 , $\text{Pb}(\text{Zr}_x\text{Ti}_{1-x})\text{O}_3$ 等的钙钛矿构造的电介质，强电介质材料，以 $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Ni}_{2/3})\text{O}_3$ 等为代表的复合钙钛矿松弛型强电介质材料，以 $\text{Bi}_4\text{Ti}_3\text{O}_{12}$, $\text{SrBi}_2\text{Ta}_2\text{O}_9$ 为代表的铋层状化合物，和以 $(\text{Sr}_x\text{Ba}_{1-x})\text{Nb}_2\text{O}_6$, PbNb_2O_6 等为代表的钨青铜型强电介材料等，因为介电常数高，容易烘烤所以是令人满意的。

另外，在其组成中含铅的电介质材料，因为氧化铅的融点为 888°C 比较低，并且氧化铅和其它氧化物系的材料，例如 SiO_2 , CuO , Bi_2O_3 , Fe_2O_3 等之间在从 700°C 到 800°C 左右的低温形成液相，所以容易在低温进行烘烤，并且因为容易得到高介电常数所以是令人满意的。例如可以举出 $\text{Pb}(\text{Zr}_x\text{Ti}_{1-x})\text{O}_3$ 等的钙钛矿构造的电介质材料，以 $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Ni}_{2/3})\text{O}_3$ 等为代表的复合钙钛矿松弛型强电介质材料，以 PbNb_2O_6 等为代表的钨青铜型强电介材料等。它们能够在氧化 Al 陶瓷等的通常的陶瓷基片的上限耐热温度的 $800\sim900^\circ\text{C}$ 的烘烤温度上容易地形成相对介电常数 $1000\sim10000$ 的电介质。

当用溶液涂敷烘烤（烧制）法形成电介质层时，用于溶液涂敷烘烤法的前驱体溶液是由构成电介质层的金属元素的金属有机化合物，或金属烷氧化物和这些金属元素与溶液中的有机物的复合体，和挥发性溶剂构成的。

溶液涂敷烘烤法指的是将溶胶凝胶法和 MOD 法等的电介质材料的前驱体溶液涂敷在基片上，通过烘烤（烧制）形成电介质层的方法。

溶胶凝胶法一般是将具有在溶于溶媒的金属烷氧化物中加入所定量的水，能够加水分解，进行多重缩合反应的 M-O-M 结合的溶胶

的前驱体溶液涂敷在基片上，通过烘烤形成膜的方法。另外，MOD (Metallo-Organic Decomposition (金属有机分解法)) 指的是通过将具有 M-O 结合的碳酸金属盐等溶于有机溶媒形成前驱体溶液，涂敷在基片上，通过烘烤形成膜的方法。在此前驱体溶液指的是包含在溶胶凝胶法和 MOD 法等的膜形成法中通过将原料化合物溶解在溶媒中生成的中间化合物的溶液。

溶胶凝胶法和 MOD 法不是完全无关的方法，一般将它们相互组合起来使用。例如，一般当形成 PZT 的膜时，作为 Pb 源用醋酸铅，作为 Ti, Zr 源用烷氧化物，对溶液进行调整。另外，也存在将溶胶凝胶法和 MOD 法这两种方法总称为溶胶凝胶法的情形，但是因为在无论哪种情形中都是将前驱体溶液涂敷在基片上，通过烘烤形成膜，所以在本说明书中统称为溶液涂敷烘烤法。另外，即便是将亚微米大小的电介质粒子和电介质的前驱体溶液混合起来的溶液也包含在本发明的电介质的前驱体溶液中，即便是将这种溶液涂敷在基片上进行烘烤（烧制）的情形也包含在本发明的溶液涂敷烘烤法中。

溶液涂敷烘烤法的特征是因为在溶胶凝胶法，MOD 法中任何一种方法的情形中，都将构成电介质的元素均匀混合起来，所以与用厚膜法形成电介质那样的本质上用陶瓷粉体烧结的方法比较，可以在极低的温度合成出致密的电介质。

用溶液涂敷烘烤法的最大目的是作为用本方法形成的电介质的特征，因为是经过涂敷并烘烤前驱体溶液的工序形成的，所以在基片的凹部形成厚的层，在基片的凸部形成薄的层。另外，它的特征是进入厚膜电介质的微孔，一直浸透到厚膜电介质的内部，致密地形成厚膜电介质全体。

用溶液涂敷烘烤法形成的电介质层的膜厚，为了使厚膜表面的凹凸不平充分平坦化，希望在 $0.5\mu\text{m}$ 以上，最好在 $1\mu\text{m}$ 以上。另外，特别当在基底和内部形成厚膜电介质时最好约为 $0.01\sim1\mu\text{m}$ 。此外，关于膜厚的下限，因为如上所述涂敷液在基片的凹部形成厚的层，在基片的凸部形成薄的层，而且进入厚膜电介质的微孔，一直浸透到厚

膜电介质的内部，所以最好在极端的情形能够确认掩埋表面凹凸不平的凹部程度的痕迹。从而，上述下限值是一个目标，最好是能够确认用溶液涂敷烘烤法形成电介质层那样的厚度，或者在能够确认它的一部分那样的区域中。

溶液涂敷烘烤法的成膜方法是通过用旋转涂敷，浸渍涂敷和喷射涂敷等方法将该前驱体溶液涂敷在基片上，在基片上形成前驱体层，其次，通过烘烤该前驱体层除去前驱体中的有机成分，通过金属元素和氧的结合形成超微细氧化物层，进一步通过烘烤该氧化物形成电介质层的方法。

我们希望用溶液涂敷烘烤法形成的电介质层具有高的介电常数。作为高介电常数材料，可以举出例如具有 BaTiO_3 , $(\text{Ba}_x\text{Ca}_{1-x})\text{TiO}_3$, $(\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x})\text{TiO}_3$, PbTiO_3 , $\text{Pb}(\text{Zr}_x\text{Ti}_{1-x})\text{O}_3$ 等的钙钛矿构造的电介质，强电介质材料，以 $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Ni}_{2/3})\text{O}_3$ 等为代表的复合钙钛矿松弛型强电介质材料，以 $\text{Bi}_4\text{Ti}_3\text{O}_{12}$, $\text{SrBi}_2\text{Ta}_2\text{O}_9$ 为代表的铋层状化合物，和以 $(\text{Sr}_x\text{Ba}_{1-x})\text{Nb}_2\text{O}_6$, PbNb_2O_6 等为代表的钨青铜型强电介材料。在这些材料中， BaTiO_3 和 PZT 等的具有钙钛矿构造的强电介质材料，因为介电常数高，容易在比较低的温度形成所以是令人满意的。

为了用本发明的复合基片得到 EL 面板，最好形成例如如图 2 所示的构造。这种 EL 面板是在具有电绝缘性的基片 1 上，层叠形成所定图案的下部电极层 2，在它上面层叠厚膜电介质层 3a, 3b 和电介质层 4a, 4b 的层叠体，进一步在它的上面层叠发光层 5，薄膜绝缘体层 6，透明电极层 7。此外，在用溶液涂敷烘烤法形成的电介质层和发光层之间既可以形成也可以省略薄膜绝缘体层 6。使下部电极层 2 和上部透明电极层 7 分别在相互正交的方向上形成带状。而且，通过分别选择任意的下部电极层 2 和上部透明电极层 7，在两电极的正交部分的发光层上选择地加上来自交流电源•脉冲电源 10 的电压，能够得到特定象素的发光。

作为发光层材料没有特别的限定，但是能够使用掺杂 Mn 的 ZnS 等的众所周知的材料。其中，因为 SrS:Ce 等具有卓越的特性是特别

令人满意的。发光层的膜厚没有特别的限定，但是过厚时驱动电压上升，过薄时发光效率降低。具体地说，根据发光材料最好约为 100~2000nm。

发光层形成方法，可以用气相堆积法。作为气相堆积法，溅射法和蒸涂法等的物理气相堆积法和 CVD 法等的化学气相堆积法是令人满意的。另外，特别当形成的 SrS:Ce 的发光层时，在 H₂S 的气氛下，将用电子束蒸涂法成膜中的基片温度保持在 500⁰C~600⁰C 形成发光层，可以得到高纯度的发光层。

形成发光层后，最好进行加热处理。既可以在从基片一侧层叠电极层，电介质层，发光层后进行加热处理，也可以在从基片一侧形成电极层，电介质层，发光层，绝缘体层，或在它上面形成电极层后进行加热处理。热处理的温度与形成的发光层有关，但是最好在 300⁰C 以上，更好的是在 400⁰C 以上，在电介质层的烘烤温度以下。处理时间最好为 10~600 分钟。作为加热处理时的气氛，与发光层的组成，形成条件有关，最好从空气，N₂，He 和 Ar 等中选择。

绝缘体层的主要目的是作为它的功能，通过调节发光层和电介质层之间的界面的电子状态，使到发光层的电子注入稳定化和高效率化，和在发光层的两面对称地构成该电子状态，改善交流驱动时的发光特性的正负对称性，因为不需要考虑保持作为电介质层起作用的绝缘耐压的功能，所以可以使膜厚变小。

绝缘体层的电阻率应在 10⁸Ω•cm 以上，特别是最好约为 10¹⁰~10¹⁸Ω•cm。另外，最好用具有比较高的介电常数的物质，它的相对介电常数最好在 3 以上。作为该绝缘体层的构成材料，能够用例如氧化硅 (SiO₂)，氮化硅 (SiN)，氧化钽 (Ta₂O₅)，氧化钇 (Y₂O₃)，氧化锆 (ZrO₂)，氧氮化硅 (SiON)，氧化 Al (Al₂O₃) 等。另外，作为形成绝缘体层的方法，能够用溅射法，蒸涂法和 CVD 法。另外，作为绝缘层的膜厚，最好约为 10~1000nm，特别是约为 20~200nm。

作为透明电极层，可以用膜厚 0.2μm~1μm 的 ITO 和 SnO₂ (透明导电膜)，ZnO-Al 等的氧化物导电性材料。作为透明电极层的形

成方法，最好用除了溅射法以外的蒸涂法等众所周知的技术。

此外，上述的 EL 元件只有单一的发光层，但是本发明的 EL 元件不限定于这样的构成，既可以在膜厚方向层叠许多不同种类的发光层，也可以具有在同一个面上平面地配置不同种类的发光层（象素）的构成。

本发明的 EL 元件的制造方法是具有，具有电绝缘性的基片，在该基片上具有图案的第 1 电极层，至少被覆上述第 1 电极层的一部分的电介质层，在该电介质层上顺次层叠至少发光层和第 2 电极层，上述电介质层是厚膜的第 1 电介质层和用溶液涂敷烘烤法形成的第 2 电介质层的多层构造的 EL 元件的制造方法，是在形成上述电极层的基片与第 1 电介质层之间的至少电极层上配置缓冲层，然后烘烤第 1 电介质层的方法。

这样，通过至少在电极层上配置缓冲层，在它上面形成厚膜电介质层进行烘烤，能够防止在它上面形成的厚膜电介质层的烘烤密度的不均匀化和防止表面的凹凸化。

形成缓冲层的目的是要改正在它上面形成的厚膜电介质层的烧结密度的不均匀化。因此，最好缓冲层是与电介质层相同的氧化物材料，特别是最好与厚膜电介质层的构成材料固溶为一体的材料。

另外，因为缓冲层是改正在形成图案的电极上的厚膜电介质层和形成电极区域以外的基片上的厚膜电介质层之间的烧结密度差的层，所以需要它至少介于显示区域上的电极和厚膜电介质层之间。此外，这时也可以为了覆盖电极层和不形成电极层的间隙部分全体那样地在所谓的衬垫上形成缓冲层。另外，当考虑到厚膜烘烤后缓冲层与厚膜电介质层形成一体化时，不需要从厚膜电介质层的形成区域露出那样地形成缓冲层。但是，为了确认缓冲层的痕迹，也可以确认在不被厚膜电介质层吸收的区域中形成并残余的缓冲层。

作为缓冲层的膜厚最好是可以改正厚膜电介质层的烧结密度不均匀化的膜厚，从电极-厚膜电介质层之间的缓冲作用来看，我们预想如果膜厚大则它的效果更加显着。如果根据本发明者们的实验研讨，

则我们看到在用溅射法形成的氧化物薄膜的情形中确认膜厚在 10nm 以上效果就十分明显，随着膜厚的增大效果继续提高，当达到 30 nm 以上时，厚膜电介质层的密度的不均匀性完全消失。

从而，需要的膜厚至少在 10nm 以上，最好在 30nm 以上。另外，因为缓冲层通过烘烤与厚膜电介质层的构成材料固溶为一体，所以实质上被厚膜电介质层吸收。但是，在用当过分厚时，不被厚膜电介质层吸收而残余下来的低介电常数材料的情形中，对元件特性产生影响。因此，特别在用比较容易成膜的低介电常数材料的情形等中，最好在 0.1μm 以下，更好的是在 0.08μm 以下。

作为缓冲层的材料，广义的金属氧化物等的陶瓷材料是令人满意的，能与厚膜电介质材料固溶在一起的材料是特别令人满意的。

具体地说，根据所用的厚膜电介质层而不同，但是氧化钽 (TaO_x ，以 Ta_2O_5 为代表)，以钛酸钡 ($BaTiO_3$) 为代表的钙钛矿型氧化物 (ABO_3 :A=从 Ba, Sr, Ca 中选择的至少一种元素，B=Ti, Zr, Hf 中选择的至少一种元素)，氧化钛 (TiO_2)，钛酸铅 ($PbTiO_3$)，氧化钇 (Y_2O_3)，氧化铌 (Nb_2O_5)，氧化锆 (ZrO_2)，PZT 等是令人满意的。在这些材料中，氧化钽，钛酸钡和氧化钛等是特别令人满意的。

作为这样的膜形成法，可以用真空蒸涂法，溅射法，CVD 法，溶胶凝胶法等方法。

另外，也可以用上述溶液涂敷烘烤法形成缓冲层，这时令人满意的材料和膜厚也如上述所示。

其次，我们参照附图说明本发明的制造方法。

首先，如图 5 所示，在基片 31 上以所定图案形成下部电极 32。能够如后所述地用溅射法，蒸涂法和涂敷法等形成下部电极层 32。另外，既可以当用掩模蒸涂等形成电极层时形成图案，也可以在形成电极后用光刻等众所周知的形成图案的方法形成图案。

其次，如图 6 所示，在形成电极图案 32 的基片 31 上形成缓冲层 33。能够如上所述地用溅射法，蒸涂法等形成缓冲层。

而且，如图 7 所示，在形成缓冲层 33 的基片 31 上形成厚膜电介质层 34。能够用网印法和层叠原料片的众所周知的厚膜法形成厚膜电介质层 34。而且，通过在所定温度烘烤（热处理）形成得到的厚膜电介质层前驱体（生的）的基片 31，如图 8 所示地得到缓冲层 33 被厚膜电介质 34 吸收形成一体化的烧结体 34。得到的烧结体，既在电极上，又在不形成电极的基片上形成均匀的烧结密度，也不会在表面上产生大的凹凸不平。此外，这时，在厚膜电介质层 34 形成区域以外的区域上形成的（更具体地说，从厚膜电介质层 34 形成区域露出地形成的）缓冲层 33 不被厚膜电介质层 34 吸收地残存下来。

而且，通过在该厚膜电介质层 34（第 1 电介质层）上顺次形成用溶液涂敷烘烤法形成的第 2 电介质层，薄膜绝缘层，发光层，薄膜绝缘层，上部电极（透明电极）等，得到 EL 元件。

用本方法得到的 EL 元件的基本构造如图 3 所示。用该方法得到的 EL 元件具有例如在具有绝缘性的基片 31 上，层叠以所定图案形成的下部电极 32，在它上面层叠能够吸收缓冲层 33 成为一体的厚膜电介质层（第 1 电介质层）34，和进一步在它上面层叠用溶液涂敷烘烤法形成的第 2 电介质层 35，构成多层状电介质层的结构。

而且，在上述多层状电介质层 34，35 上层叠薄膜绝缘体层 36，发光层 37，薄膜绝缘体层 38，透明电极层 39。此外，也可以省略薄膜绝缘体层 36，38。下部电极层 32 和上部透明电极层 39 分别在相互正交的方向上形成带状。而且，通过分别选择任意的下部电极层 32 和上部透明电极层 39，在两电极的正交部分的发光层上选择地加上来自交流电源•脉冲电源 40 的电压，能够得到特定象素的发光。

另外，例如，如图 4 所示那样地，该 EL 元件也可以在上述厚膜电介质层 34 的基片一侧的一部分上具有能够确认缓冲层成分扩散的混合层 33a 的区域。

（实施例）

（实施例 A-1）

在纯度为 96% 的氧化 Al 基片上，用溅射法形成厚度 $15\mu\text{m}$ 的添加了微量添加物的 Au 薄膜，在 850°C 进行热处理使它稳定化。用光刻法使该 Au 下部电极形成宽 $300\mu\text{m}$ ，间隙 $30\mu\text{m}$ 的许多带状的图案。

在形成上述下部电极的基片上，进一步用网印法形成电介质陶瓷厚膜。作为厚膜糊剂，用 ESL 公司制的 4210C 厚膜电介质糊剂，为了使烘烤后的膜厚达到 $5\mu\text{m}$ 那样地，重复进行网印，干燥等工序。

印刷干燥后，用带状炉在供给充足空气的气氛中对厚膜进行 850°C ，20 分钟的烘烤。

其次，在该基片上，用溶液涂敷烘烤法形成电介质层。作为用溶液涂敷烘烤法形成电介质层的方法，准备好用下面的方法制作的 PZT 的溶胶凝胶液，用作溶液涂敷烘烤法的前驱体溶液。首先，以所定次数重复进行用旋转涂敷法在基片上涂敷前驱体溶液，在 700°C 烘烤 15 分钟的作业。

基本的溶胶凝胶液的制作方法是对 8.49g 的醋酸铅三水化物和 4.17g 的 1.3 丙二醇加热搅拌约 2 小时，得到透明的液体。除此以外，在干燥的氮气中对 3.70g 的 70% 质量的锆•正丙氧基，1-异丙醇溶液和 1.58g 的乙酰丙酮进行 30 分钟的加热搅拌，在其中加入 3.14g 的 75% 质量的钛•二异丙酮（日文：ジイソブロボキシド）•二乙烯丙酮，2-异丙醇溶液， 2.32g 的 1.3 的丙二醇，进一步加热搅拌 2 小时。在 80°C 混合这样两种溶液，在干燥的氮气中加热搅拌 2 小时，制成褐色透明的溶液。通过将该溶液保持在 130°C 数分钟除去副生成物，进一步通过加热搅拌 3 小时制成 PZT 前驱体溶液。

PZT 前驱体溶液的粘度调制是通过用 n-异丙醇稀释进行的。调制旋转涂敷条件和溶胶凝胶液的粘度，用旋转涂敷法重复涂敷和烘烤每单层的电介质层的膜厚，形成膜厚约为 $1\mu\text{m}$ 的 PZT 电介质层。

重复进行同样的操作，分别层叠 $10\mu\text{m}$ 的厚膜电介质层和 $1\mu\text{m}$ 的用溶液涂敷烘烤法形成的电介质层，形成 $5\mu\text{m}$ 的厚膜电介质层/ $1\mu\text{m}$ 的用溶液涂敷烘烤法形成的电介质层/ $10\mu\text{m}$ 的厚膜电介质层/ $1\mu\text{m}$ 的用溶液涂敷烘烤法形成的电介质层的层叠层。该层叠层的相对介电常

数约为 2500。

通过用在 200°C 加热状态中掺杂 Mn 的 ZnS 蒸涂源和形成膜厚为 $0.8\mu\text{m}$ 的 ZnS 发光体薄膜的真空蒸涂法，形成发光层后，在真空中在 600°C 对它进行 10 分钟的热处理。

其次，通过用溅射法顺次地分别形成作为绝缘体层的 $0.1\mu\text{m}$ 的 Si_3N_4 薄膜和作为上部电极层的 $0.5\mu\text{m}$ 的 ITO 薄膜，制成 EL 元件。这时，通过在成膜时用金属掩模，使上部电极层的 ITO 薄膜形成线宽 1mm ，间隙 0.5mm 的许多带状的图案。

另外，作为比较样品，分别形成 1 层的 $30\mu\text{m}$ 的厚膜电介质层和约 $3\mu\text{m}$ 的用溶液涂敷烘烤法形成的电介质层，制成样品。

从得到的元件构造的下部电极，上部透明电极引出电极，加上频率为 1kHz ，宽度为 $50\mu\text{s}$ ，电压为 180V 的脉冲电压，使元件在 25°C 中进行工作，测定连续驱动时的相对亮度特性 L/L_0 。在此 L_0 是开始加上电压时的亮度。此外，本发明样品和比较样品 3 是在大气压以下的 N_2 气中进行密封的。即，是在 EL 面板中的用密封玻璃密封的空间中充有大气压以下的 N_2 气的 EL 面板。将用同样的方法，在大气压的 N_2 气下进行密封的 EL 面板作为比较例 1，另外，将干燥剂和不实施密封的 EL 面板放入比密封空间大的收缩管（玻璃管）中，在进行 N_2 气置换后，将压力减小到大气压以下的 EL 面板作为比较例 2。结果如图 9 所示。

在图 9 中，将换算成驱动频率 75Hz 时的工作时间作为横轴（X 轴），将发光亮度的相对特性值作为纵轴（Y 轴）。另外，横轴上所示的值 1 表示开始加上电压时间。如从图可见的那样，本发明的样品比在比较样品中具有最佳特性的比较 A-1 更加优越，几乎看不到亮度的恶化。

（实施例 A-2）

为了进行本发明的复合基片的耐电压试验，制作下述构成的样品：

氧化 Al 基片/下部 Au 电极/复合厚膜电介质（本发明的构造）/上部 ITO 电极。

下部 Au 电极和上部 ITO 电极具有与实施例 A-1 相同的形状，各自的线数分别为 80 条，70 条。

如下形成复合厚膜电介质。在此，用 A 表示厚膜电介质层，用 B 表示溶液涂敷电介质层，从左开始记录层叠顺序。制作

样品 V-1: A-5μm/B-1μm/A-10μm/B-1μm

样品 V-2: B-0.3μm/A-5μm/ B-0.1μm/A-10μm/B-1μm

样品 V-3: A-5μm/ B-0.1μm/A-5μm/B- B-0.1μm/A-5μm/ B-1μm

而且，用已有构造制作上述样品的比较例，

样品 V-4（已有构造）: A-20μm/ B-1μm。

用菊水电子工业（股份有限公司）制的耐电压试验器-TOS5052 进行耐电压试验。试验条件是对于下部 Au 电极的全部 80 条线，和上部 ITO 电极的每 1 条线，在 60Hz 的正弦波条件下以 10V 为一级在各电压上保持 3 秒钟，阶梯状地提高电压，测定流过 1.0mA 电流的电压作为破坏电压。各样品 70 点的平均破坏电压和最低破坏电压等如表 1 所示。

表 1

样品 No. (A+B 层数)	A+B 的总膜 厚 (μm)	平均破坏电压 (V)	最低破坏电压 (V)	交流 200V 总 破坏个数(个)	交流 250V 总 破坏个数(个)
V-1(4)	17.0	334	270	0	0
V-2(5)	16.4	342	290	0	0
V-3(6)	16.2	345	300	0	0
V-4(2)	21	315	170	2	3

如从表 1 可以看到的那样，样品 V-1 相对于样品 V-4 的已有构造品，最低破坏电压上升 100V。进一步到 250V 的破坏总数相对于样品 V-4 的已有构造品的 3 个，在本发明的构造中，无论哪个样品都是 0

个。该结果清楚地显现了本发明构造的优越性。

当比较 A+B 的总层数时，与 A+B 的总膜厚无关，A+B 的层数每增加 1，都使平均破坏电压增高，也使最低破坏电压增高。因此，可以说 A+B 的层数每增加 1 都使 EL 面板的可靠性提高。

（实施例 B-1）

在纯度为 96% 的氧化 Al 基片上，用 RP2003/237-22% 树脂化金糊剂，使烘烤后的膜厚成为 $0.6\mu\text{m}$ 那样地重复进行网印，干燥的工序。然后，在供给充足空气的气氛中对膜进行 850°C ，20 分钟的烘烤。用光刻法使得到的电极层形成宽 $250\mu\text{m}$ ，间隙 $30\mu\text{m}$ 的许多带状图案。

用溅射法在形成上述下部电极的基片上，分别形成氧化钽，钛酸钡，氧化 Al 的缓冲层。这时的成膜条件分别如下所示。

（1）氧化钽（ Ta_2O_5 ）

靶： Ta_2O_5

溅射气体： Ar 100SCCM

反应气体： O_2 15SCCM

成膜时的压力： 0.4Pa

（2）钛酸钡（ BaTiO_3 ）

靶： BaTiO_3

溅射气体： Ar 60SCCM

成膜时的压力： 0.5Pa

（3）氧化 Al（ Al_2O_3 ）

靶： Al_2O_3

溅射气体： Ar 100SCCM

成膜时的压力： 0.4Pa

当对得到的膜的组成进行解析时，分别地上述（1）氧化钽膜为 Ta_2O_5 ，（2）钛酸钡膜为 BaTiO_3 ，（3）氧化 Al 膜为 Al_2O_3 。此外，对钛酸钡膜，在成膜后进行 700°C ，10 分钟的热处理。

这些膜中，使由氧化钽形成的 $0.03\mu\text{m}$ 的膜为样品 B-1，使由钛酸钡形成 $0.03\mu\text{m}$ 的膜为样品 B-2，使由氧化钽形成的 $0.1\mu\text{m}$ 的膜为样品 B-3。另外，使由氧化 Al 形成的 $0.03\mu\text{m}$ 的膜为比较样品 B-1，不形成缓冲层的样品为比较样品 B-2。该状态的样品 B-1 的部分截面照片如图 10 所示。

而且，用网印法形成电介质陶瓷厚膜。作为厚膜糊剂，用 ESL 公司制的 4210C 厚膜电介质糊剂，使烘烤后的膜厚成为 $20\mu\text{m}$ 那样地重复进行网印，干燥的工序。

印刷干燥后，用带状炉在供给充足空气的气氛中对厚膜进行 850°C ，20 分钟的烘烤。在下部电极和在厚膜上形成的测定用的试验电极之间测量该厚膜的介电常数时，约为 3600，与块的值大略一致。从而，我们看到几乎能够完全忽视缓冲层对介电常数的影响。

该厚膜电介质层的表面是平坦的，几乎不能确认来自厚膜材料的表面粗糙度以上的凹凸不平。但是，与下部电极的图案形状相对应的段差也可以从表面得到某种程度的确认，但是没有对显示器的功能造成任何障碍。另外，切断形成厚膜电介质层的基片，调查截面时，我们看到不能确认缓冲层的形迹，从眼睛看来已经完全被厚膜层吸收，成为一体。图 11 表示该状态的样品 B-1 的部分截面照片。

在这些基片上，用溶液涂敷烘烤法形成电介质层。作为用溶液涂敷烘烤法形成电介质层的方法，准备好用以下方法制作的 PZT 的溶胶凝胶液，用作溶液涂敷烘烤法的前驱体溶液。首先，以所定次数重复进行用旋转涂敷法在上述厚膜电介质层上涂敷前驱体溶液，在 700°C 烘烤 15 分钟的作业。

基本的溶胶凝胶液的制作方法是对 8.49g 的醋酸铅三水化物和 4.17g 的 1.3 丙二醇加热搅拌约 2 小时，得到透明的液体。除此以外，在干燥的氮气中对 3.70g 的 70% 质量的锆•正丙氧基，1-异丙醇溶液和 1.58g 的乙酰丙酮进行 30 分钟的加热搅拌，在其中加入 3.14g 的 75% 质量的钛•二异丙 •二乙烯丙酮，2-异丙醇溶液， 2.32g 的 1.3 的丙二醇，进一步加热搅拌 2 小时。在 80°C 混合这样两种溶液，在

干燥的氮气中加热搅拌 2 小时，制成褐色透明的溶液。通过将该溶液保持在 130°C 数分钟除去副生成物，进一步通过加热搅拌 3 小时制成 PZT 前驱体溶液。

PZT 前驱体溶液的粘度调制是通过用 n-异丙醇稀释进行的。通过调制旋转涂敷条件和溶胶凝胶液的粘度，使每单层的电介质层的膜厚为 1 层约 $0.5\mu\text{m}$ 。将上述溶胶凝胶液作为 PZT 前驱体溶液，用旋转涂敷法重复进行 3 次涂敷和烘烤，形成膜厚约为 $1.5\mu\text{m}$ 的 PZT 电介质层。

当用眼睛观察评价这时的 PZT 表面的状态时，没有看到发生裂纹等。另一方面，不形成缓冲层的比较样品 B-2，在部分表面上发生图 12 所示的裂纹。

通过用在 200°C 加热状态中掺杂 Mn 的 ZnS 蒸涂源和形成膜厚为 $0.8\mu\text{m}$ 的 ZnS 发光体薄膜的真空蒸涂法，形成发光层后，在真空中在 600°C 对它进行 10 分钟的热处理。

其次，通过用溅射法顺次地形成作为绝缘体层的 Si_3N_4 薄膜和作为上部电极层的 ITO 薄膜，制成 EL 元件。这时，上部电极层的 ITO 薄膜通过用剥离法形成宽 $250\mu\text{m}$ ，间隙 $30\mu\text{m}$ 的带状图案。

对得到的元件，评介有无发光时的亮点等的异常发光。另外，从本发明的样品 B-1，B-2 和 B-3，氧化 Al 的比较样品 B-1，和不形成缓冲层的比较样品 B-2 中，选出比较良好状态的样品对它的发光特性 (L-V 特性) 进行评介。从得到的元件构造的下部电极，上部透明电极引出电极，用 75kHz 的宽 $100\mu\text{s}$ 的脉冲加上直到使发光亮度饱和的电场，测定发光特性。

本发明样品的在 $100\text{cd}/\text{m}^2$ 发光时的状态如图 13 所示，比较样品的在 $100\text{cd}/\text{m}^2$ ， $600\text{cd}/\text{m}^2$ 的各个发光时的状态如图 14，15 所示。我们从这些图看到，与在比较样品中观察到很多发光的不均匀性，特别是在低亮度时的许多基点相反，在本发明样品中能够得到均匀的发光。

另外，本发明样品 B-1 和比较样品 B-2 的 L-V 特性如图 16 所示，

本发明样品 B-2 和比较样品 B-1, B-2 的 L-V 特性如图 17 所示, 本发明样品 B-3 和比较样品 B-2 的 L-V 特性如图 18 所示。我们从该 L-V 特性曲线可以看到即便设置缓冲层也不会使电特性恶化, 能够得到与已有同等的发光特性。另外, 我们看到对于用不与厚膜陶瓷层固溶的氧化 Al 的样品, 因为不与厚膜层形成一体所以产生缓冲层的影响, 使驱动电压上升。

如果根据上述的本发明, 则能够提供确保厚膜绝缘体层的绝缘性, 而且由薄膜制成的发光层等的功能性薄膜能够稳定工作, 特别是可以稳定发光的复合基片和 EL 面板及其制造方法。

另外, 能够提供在用溶胶凝胶电介质层确保厚膜陶瓷电介质层的表面平坦性的 EL 元件中, 制造稳定性高, 没有元件驱动时的 EL 发光不均匀的 EL 元件的制造方法和 EL 元件。

图1

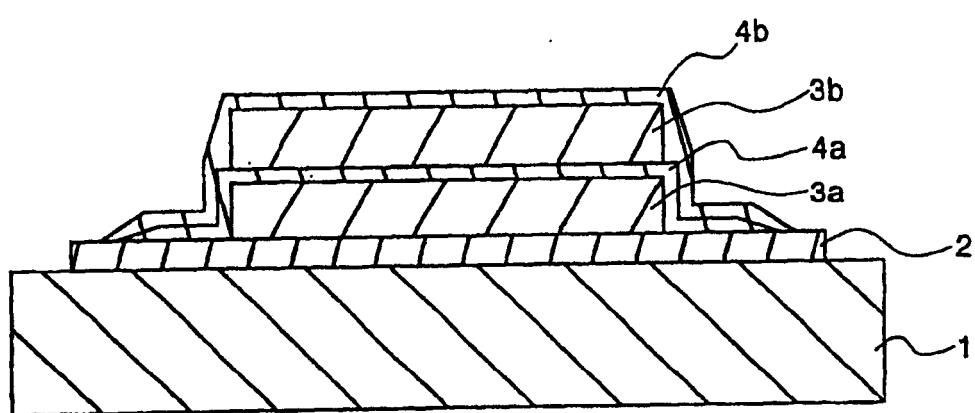


图20 现有技术

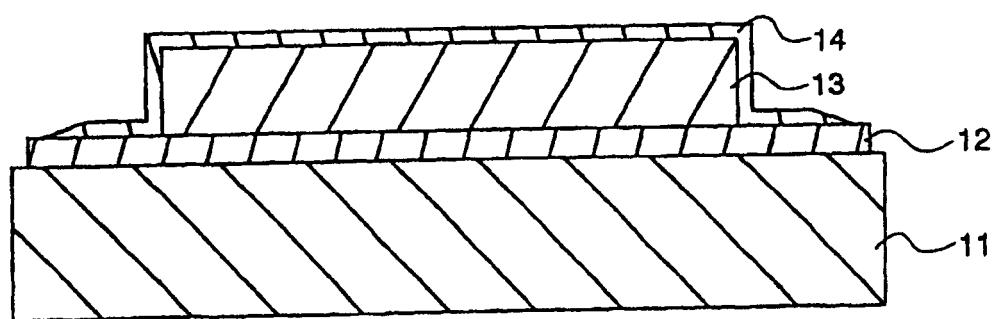


图 2

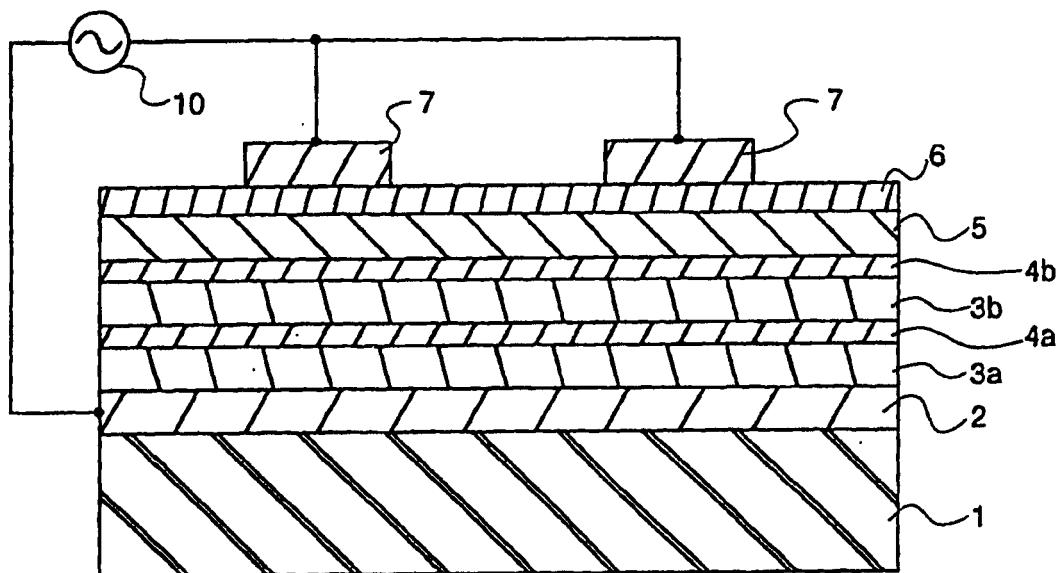


图19现有技术

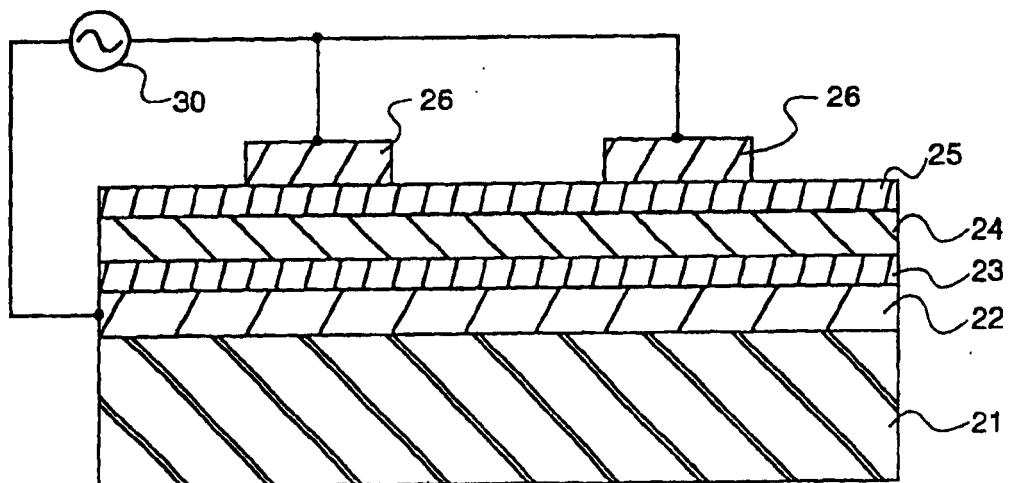


图 3

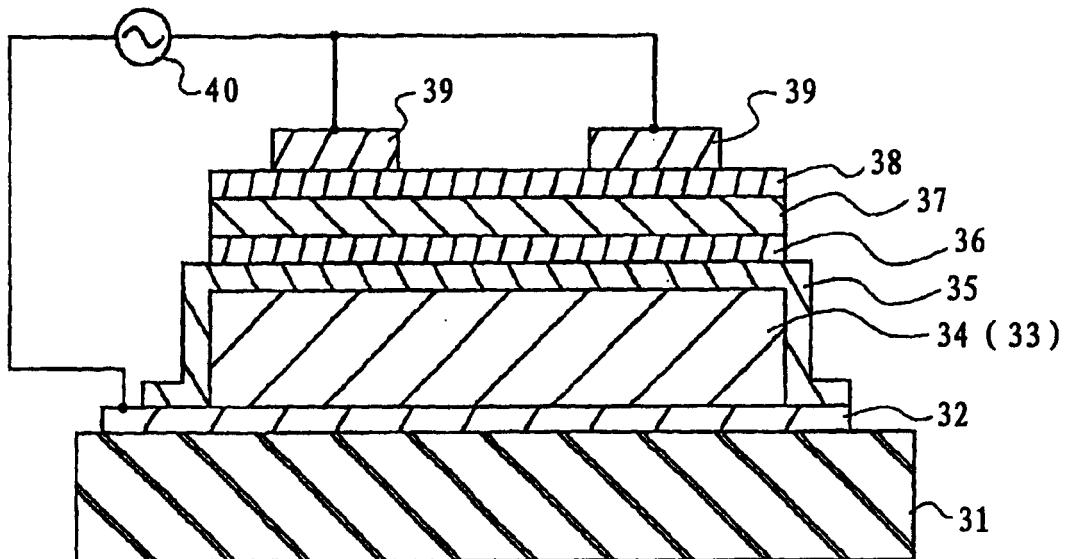


图 4

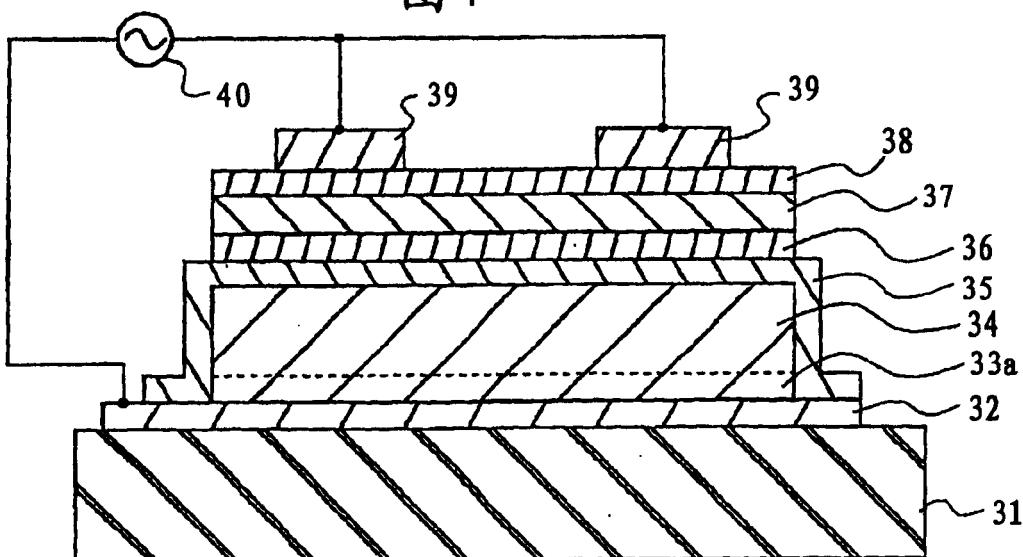


图 5

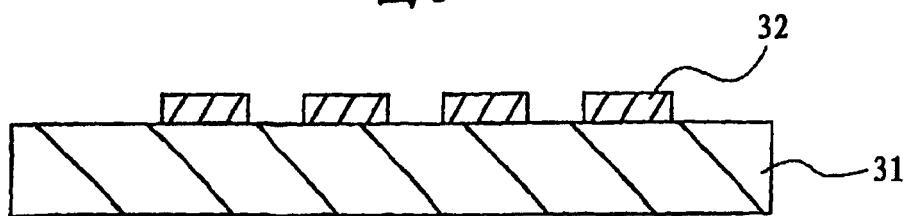


图 6

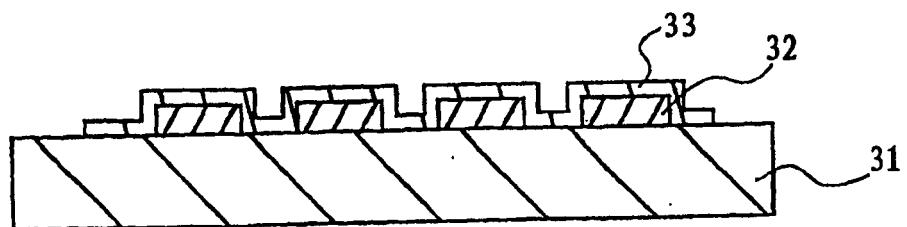


图 7

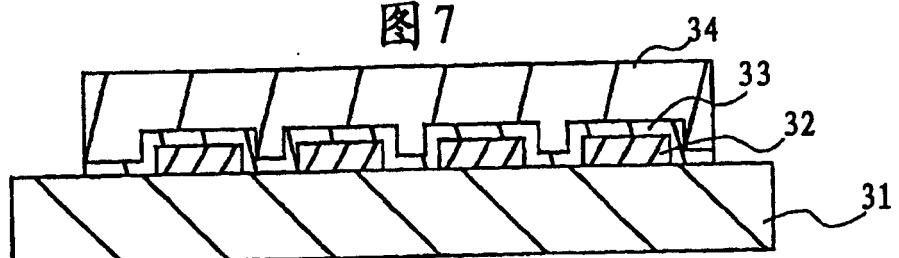


图 8

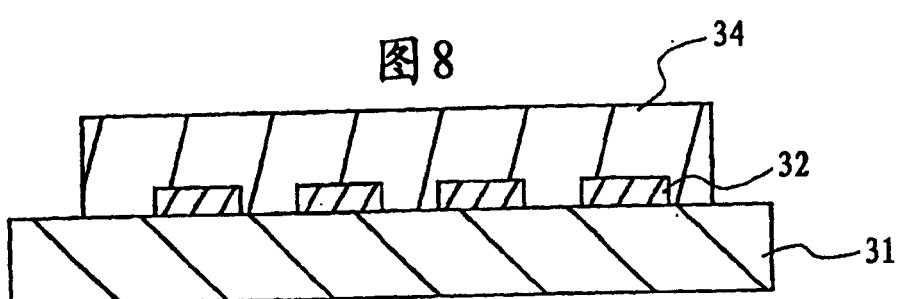


图 10

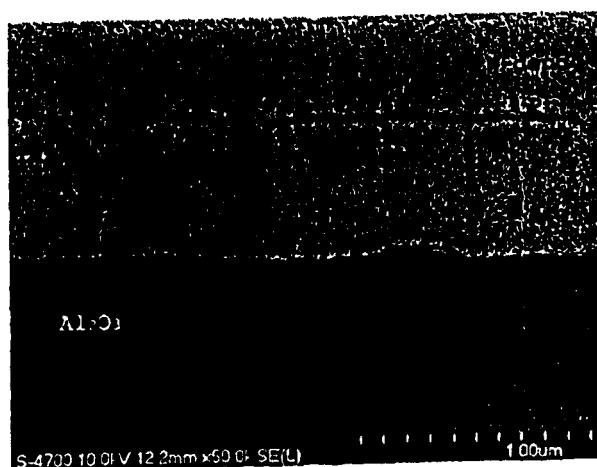


图9

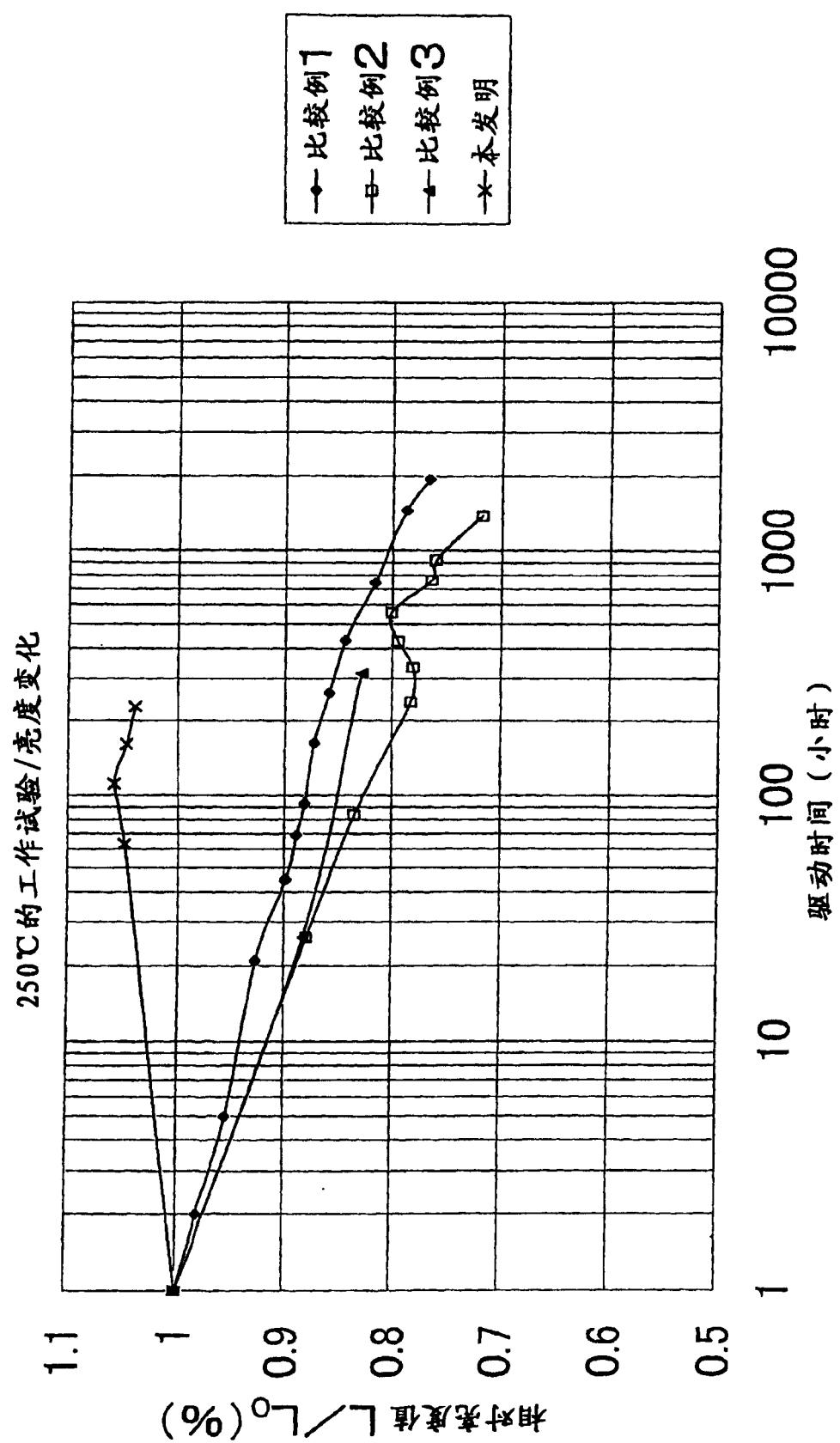


图11

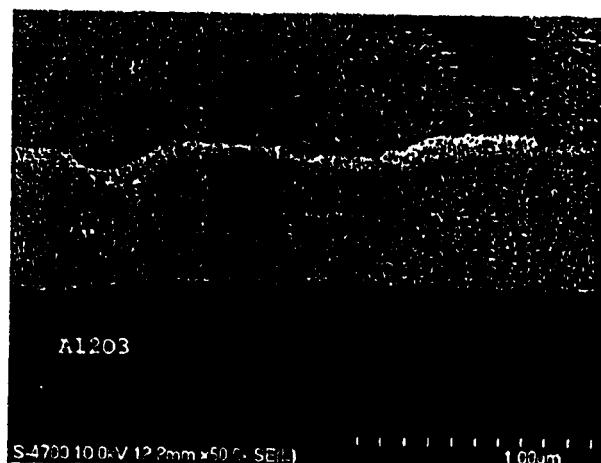


图12

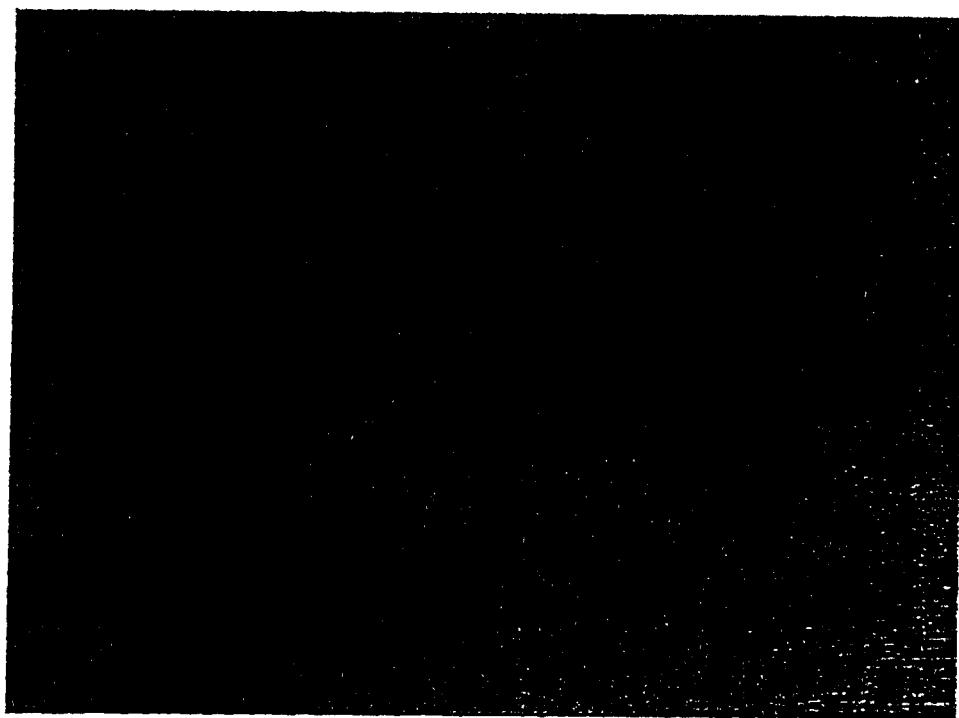


图13

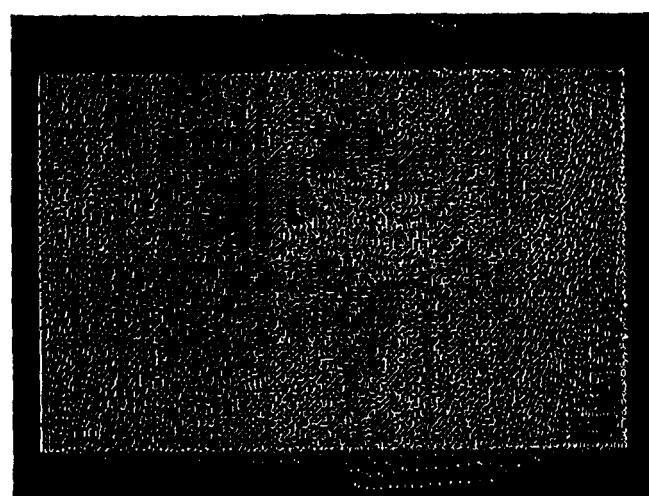


图14

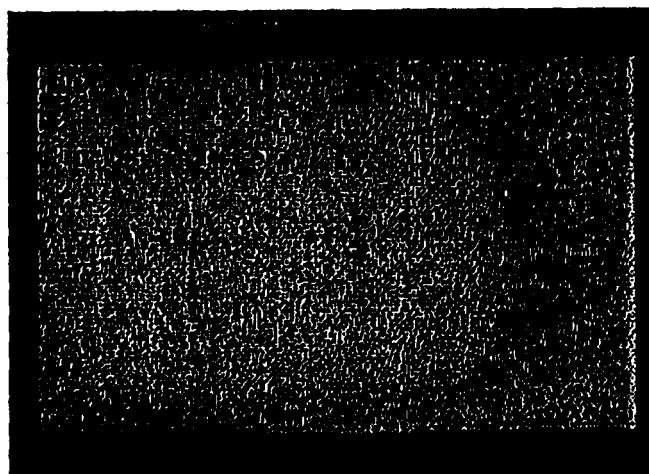


图 15

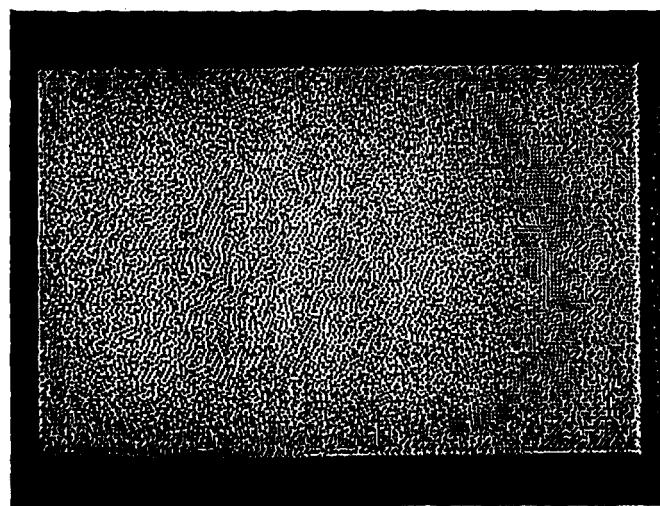


图 16

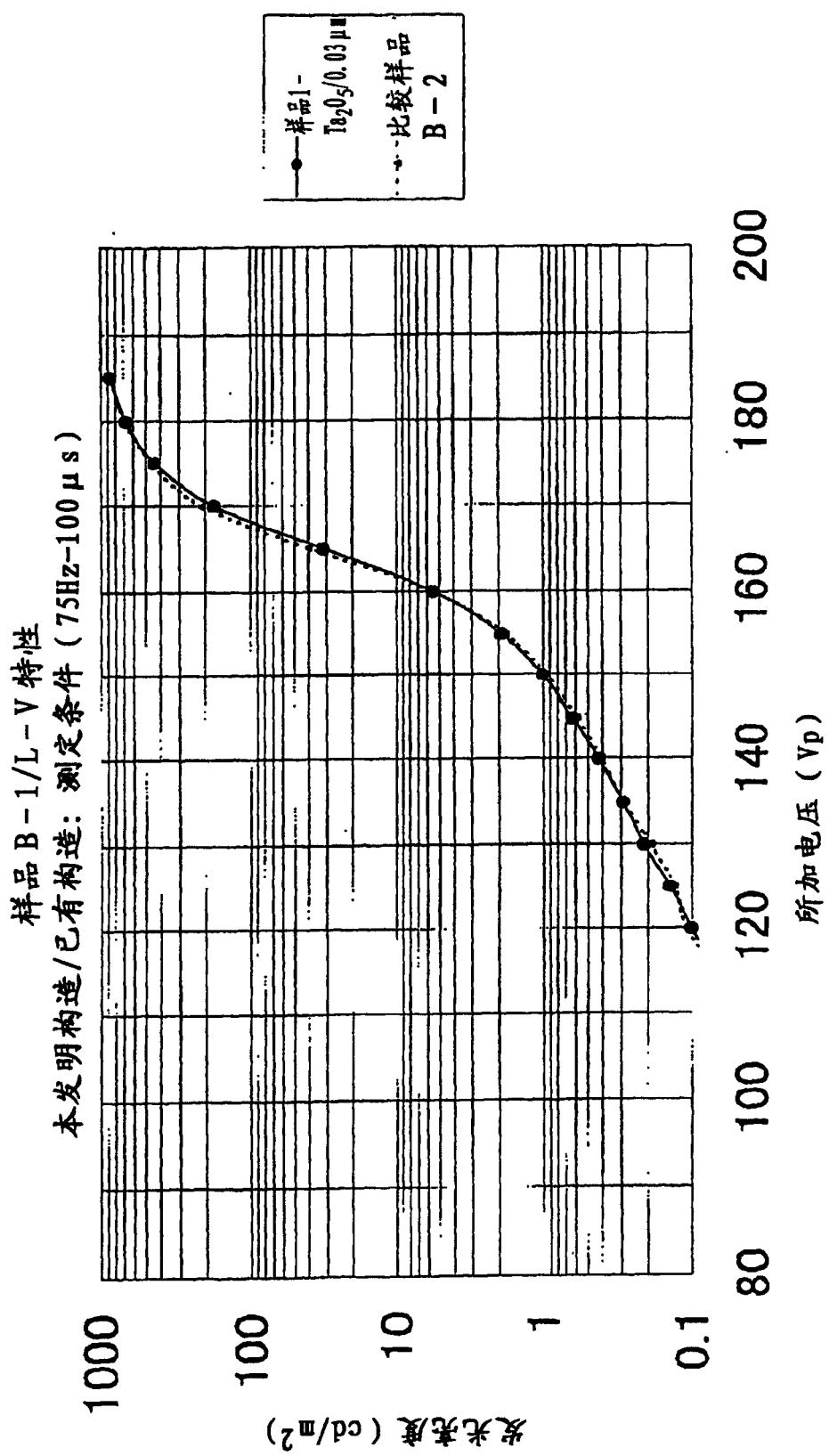


图 17

样品 B-2/L-V特性
本发明构造/已有构造：测定条件（75Hz-100 μ m）

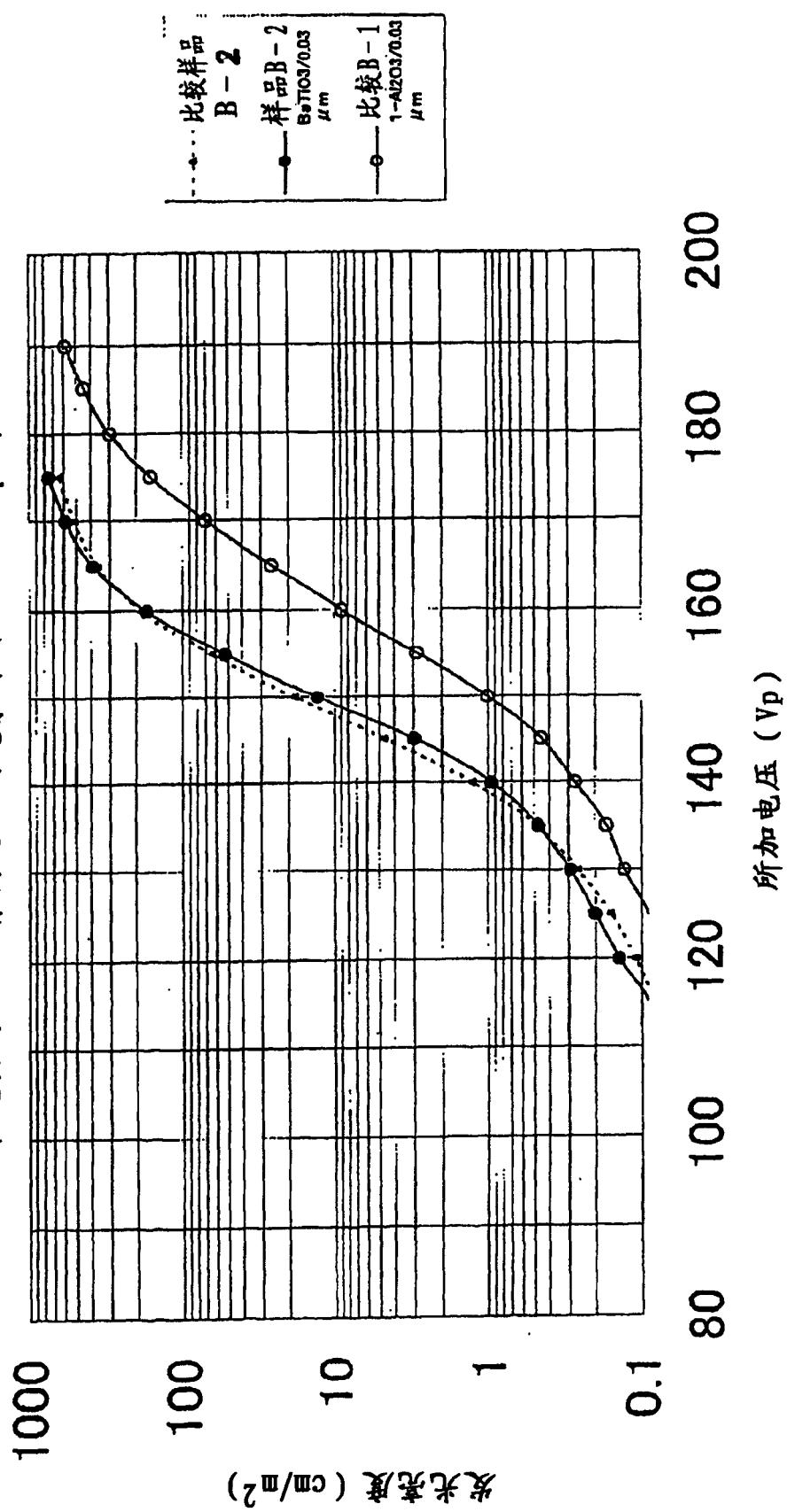
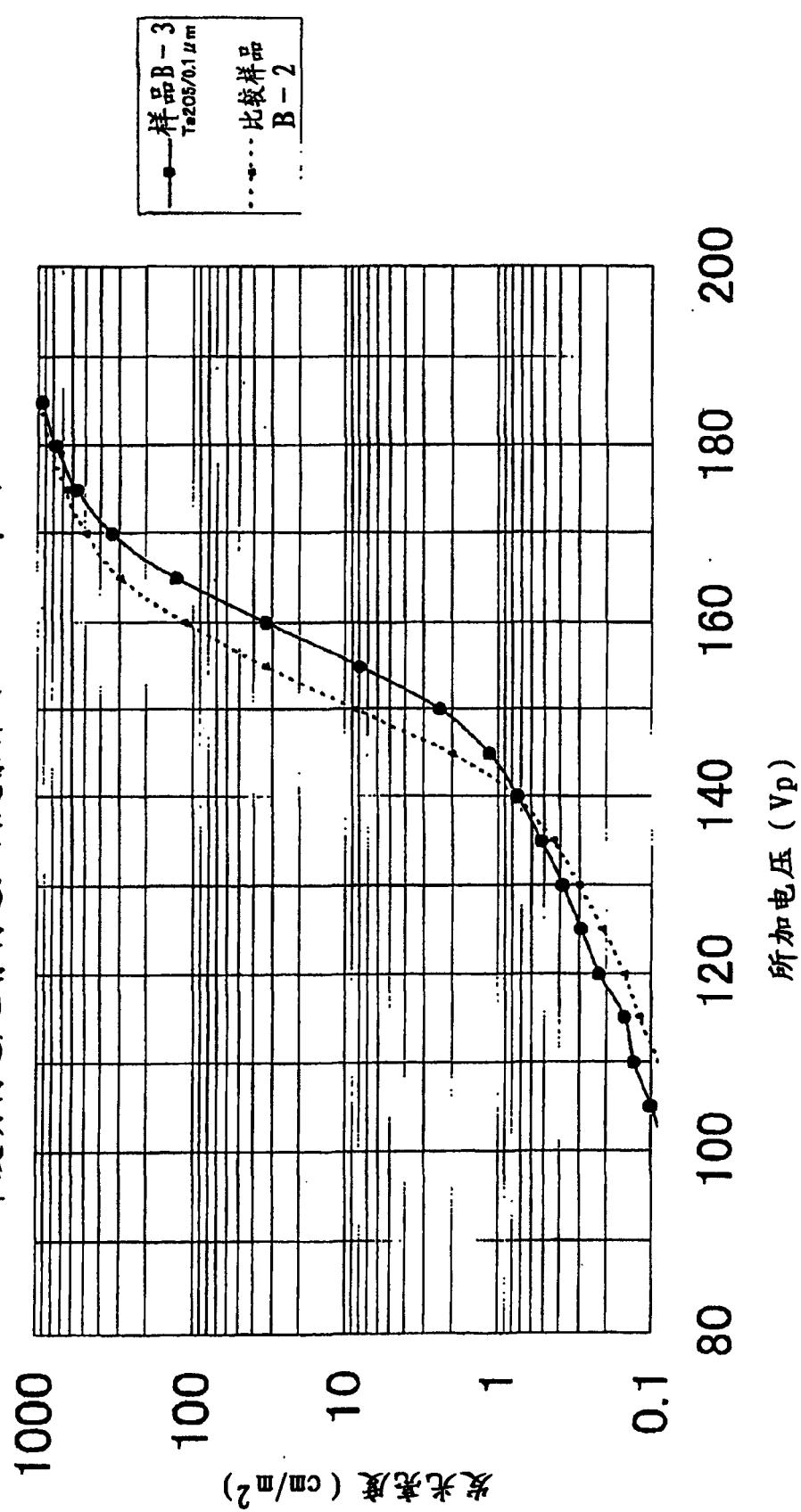


图18

样品B-3/L-V特性
本发明构造/已有构造：测定条件 (75Hz-100 μ m)



专利名称(译)	复合基片和使用它的EL面板、及其制造方法		
公开(公告)号	CN1287640C	公开(公告)日	2006-11-29
申请号	CN02147087.1	申请日	2002-10-29
[标]申请(专利权)人(译)	东京电气化学工业株式会社		
申请(专利权)人(译)	TDK株式会社		
当前申请(专利权)人(译)	威斯特姆公司		
[标]发明人	斎田良夫 萩原淳 白川幸彦 薄田真人		
发明人	斎田良夫 萩原淳 白川幸彦 薄田真人		
IPC分类号	H05B33/22 C04B41/52 C04B41/89		
CPC分类号	C04B2111/80 C04B41/89 Y10S428/917 H05B33/22 C04B41/009 C04B41/52 C04B2111/00844 Y10T428/31504		
代理人(译)	李德山		
优先权	2001331588 2001-10-29 JP 2002151043 2002-05-24 JP		
其他公开文献	CN1416303A		
外部链接	Espacenet SIPO		

摘要(译)

本发明提供一种复合基片，至少具有基片、在该基片上形成的电极、以及通过用厚膜法烘烤粉末状的绝缘材料而在该电极上形成的厚膜电介质层即第1电介质层，在上述第1电介质层上、以及在第1电介质层的下部和/或第1电介质层之间形成有通过溶液涂敷烘烤法形成的第2电介质层。根据本发明的复合基片，能确保厚膜电介质层的绝缘性，而且由薄膜制成的发光层等的功能性薄膜能够稳定工作，特别是可以稳定发光。

