

基于 ZnS 增透膜的顶发射白光有机发光二极管*

陈淑芬 邵茗 郭旭 钱妍 石乃恩 解令海 杨洋 黄维†

(南京邮电大学信息材料与纳米技术研究院, 江苏省有机电子与信息显示重点实验室, 南京 210046)

(2011年5月23日收到; 2011年9月2日收到修改稿)

顶发射白光有机发光二极管 (TEWOLED) 在白光照明和全彩显示中有着良好的应用前景, 克服顶发射器件中的微腔效应是制备光电性能良好的 TEWOLED 的前提. 使用具有高折射率的 ZnS 作为增透膜改善金属阴极在蓝光波段的透射率, 降低其反射性, 从而有效抑制了微腔的影响. 同时利用转移矩阵理论和宽角干涉方法分别对阴极结构和蓝光发光层位置进行了优化, 最终获得了高效、色纯度良好、色度随视角变化小的 TEWOLED. 最高亮度和效率分别达到 9213 cd/m^2 和 3 cd/A , 色坐标位于白光区且接近白光等能点, 同时具有良好的视角稳定性, 在 $0^\circ\text{--}60^\circ$ 范围内色坐标仅变化 (0.02, 0).

关键词: 白光有机发光二极管, 顶发射, 增透膜, 转移矩阵理论

PACS: 78.60.Fi, 78.20.-e, 73.21.-b, 73.61.Ph

1 引言

有机发光二极管 (OLED) 因具有高亮度、高发光效率、超薄、抗振、响应速度快、工作温度宽、可实现柔性等优点受到了国内外科学界和产业界的重视^[1-7]. 白光 OLED 不仅可实现全彩显示, 还可作为照明光源和液晶显示器的背光源, 因此受到普遍关注^[8-12]. 通常的白光 OLED 为底发射结构, 即光从铟锡氧化物 (ITO) 阳极和透明玻璃基底一侧射出. 由于底发射 OLED 将像素驱动电路制作在 OLED 像素周边, 因此会影响到显示屏的开口率. 同时, 使用底发射结构导致的像素面积变小使得显示屏要获得足够的亮度必须增加单个像素的亮度, 这势必会影响显示屏的工作寿命. 顶发射结构^[13-15] 可以将 OLED 制作在不透明基底上, 光从顶部透明或半透明电极射出, 因此可以完全避免上述底发射 OLED 的缺点. 顶发射白光有机发光二极管 (TEWOLED) 兼顾了顶发射 OLED 和白光 OLED 的优点, 故受到了更多的关注和研

究^[16-27].

根据出光一侧阴极透明程度, TEWOLED 可以分为两类. 一类是以高透明的金属氧化物作为阴极, 如 Kanno 等^[16] 采用 ITO 作为阴极制备的 TEWOLED, 其效率达到 $(9.8 \pm 1.0) \text{ lm/W}$, 白光色坐标位于 (0.42, 0.39). 这类 TEWOLED 因 ITO 的透明度很高而容易获得白光发射, 效率也较高. 缺点是 ITO 膜层通常采用溅射的方式获得, 溅射 ITO 过程中容易对底部的有机层造成破坏, 因此要严格控制 ITO 的生长工艺. 目前对这一类 TEWOLED 所开展的研究工作很少. 另一类是以半透明的金属作为阴极, 由于金属的透光性普遍较差, OLED 的底部反射电极与顶部半透明电极构成一个谐振腔, 谐振腔对光的选择性使得 TEWOLED 制备相对困难. 为了获得白光发射, 研究人员通常使用增透膜改善半透明阴极的透过率. 如 Hsu 等^[17] 采用 22.5 nm 的 SnO_2 改善了 Ca/Ag 阴极的透光性. 引入 SnO_2 增透膜的阴极在绿光区域和红光区域透光性大幅度提高, 而在蓝光区域的透过率相对较低. 虽然白

* 国家重点基础研究发展计划 (批准号: 2009CB930600)、国家自然科学基金 (批准号: 60907047, 60977024, 21101095, 20974046, 21003076, 51173081, 61136003)、高等学校博士学科点专项科研基金 (批准号: 20093223120003)、江苏省自然科学基金 (批准号: BK2009423)、江苏省高等学校自然科学基金 (批准号: SJ209003, 09KJB150009, 10KJB510013, TJ209035)、江苏省“青蓝工程”和南京邮电大学攀登计划 (批准号: NY210015) 资助的课题.

† E-mail: wei-huang@njupt.edu.cn

光的效率很高, 达到 22.2 cd/A (9.6 lm/W), 但是色度较差, 色坐标仅为 (0.31, 0.47), 远离白光区域而更接近黄光区域, 这主要是半透明电极对于蓝光波段的透过率较低所致. Ji 等^[23] 采用 MoO_x 增透膜改善 Al/Ag 阴极的透光性. 引入 35 nm 的 MoO_x 增透膜使得阴极在整个发光区域 (450—600 nm) 的透光性仅达到 25%—40%. 虽然黄光材料双-(2-(2-氟苯基)-1, 3-苯并噻唑基 -N, C2') 乙酰丙酮基合铱 ((F-BT)₂Ir(acac)) 的发光效率很高, 但是白光器件的效率受蓝光材料 4, 4'-二(2,2-二苯乙烯基)-1, 1'-联苯 (DPVBi) 和阴极透过率的限制也仅能达到 7.3—8.4 cd/A. 值得一提的是, 其色坐标较好, 位于白光区域. Xie 等^[24] 采用低反射 Cu 作为阳极, 半透明 Al/Ag 作为阴极, 制备了基于蓝色磷光材料双 3, 5-二氟-2-(2-吡啶基) 苯基-(2-吡啶甲酰) 合铱 (FIrpic) 和黄色磷光材料 (F-BT)₂Ir(acac) 的 TEWOLED, 在 10 mA/cm² 电流密度下发光效率可高达 27.7 cd/A, 其颜色接近黄光区域, 在 100—20000 cd/m² 亮度变化范围内色坐标移动幅度超过 (0.03, 0.15). 使用 4, 4', 4''-三(N-3-甲基苯基-N-苯基氨基) 三苯胺 (*m*-MTDATA) 作为输出耦合层之后其效率 (24.8 cd/A) 略有下降, 但其色度移动范围降至 (0.02, 0.01) 之内. 另一种获得 TEWOLED 的方法是制备顶发射蓝光 OLED, 将其与涂在出光一侧表面的黄光或红光色转换层结合起来, 通过调整蓝光与黄(红)光的比例获得白光发射. 如 Ji 等^[21] 利用黄色磷光材料 3-(4-(二苯基胺) 苯基)-1-苯基丙-2-烯-1-酮 (DPPO) 作为色转换层将其蒸镀于 DPVBi 发光的蓝光顶发射 OLED 顶部半透明阴极 Al/Ag 外表面, 获得了白光发射. 其优点是结构相对较为简单, 缺点是发光效率很低, 仅有 1.1 cd/A, 且色坐标随视角变化大. Chen 等^[25] 用高发光效率的蓝光磷光材料 FIrpic 代替荧光材料 DPVBi, 结合能带较为匹配的 4, 4'-双(9-咔唑基)-2, 2'-二甲基联苯 (CDBP) 作为蓝光母体材料制备了蓝光顶发射 OLED, 同时利用聚集诱导发光的红光材料 4-(4-(1, 2, 2-三苯基乙烯基) 苯基)-7-(5-(4-(1, 2, 2-三苯基乙烯基) 苯基) 噻吩-2) 苯并 [c] [1, 2, 5] 噻二唑 (BTPETTD) 作为色转换层制备了发光效率高 (电流效率和功率效率分别为 17.7 cd/A 和 8.7 lm/W)、色纯度 (色坐标为 (0.34, 0.35)) 良好的 TEWOLED. 该白光 OLED 的缺点是视角效应明显, 从垂直观察角 (0°) 变化到 60° 时电致发光 (EL) 光谱有很大的变化, 相应的色坐标变化达到 (0.059, 0.072).

分析上述研究成果可以看出, TEWOLED 的发光效率虽然不断得到提升, 然而大部分白光的色度依然远离白光等能点, 尤其色坐标随视角的变化较大, 这将严重限制 TEWOLED 的应用. 色度随视角的变化主要源于微腔的影响, 本文采用高折射率的 ZnS 作为输出耦合材料, 有效降低了金属阴极的反射率, 抑制了微腔的影响, 制备了色度、效率均较佳的 TEWOLED, 在很大程度上改善了白光的视角和光谱稳定性. 本文借助增透膜获得白光的方法虽与文献 [17, 23, 24] 的设计理念相似, 然而 ZnS 的折射率更高 (波长为 550 nm 时, ZnS 的折射率为 2.36, SnO₂ 约为 2.0, *m*-MTDATA 为 1.75, MoO_x 为 1.315), 对微腔的抑制更有效. 此外, 文献 [17] 将阴极最佳透射范围设定在绿光区域和红光区域, 而文献 [23, 24] 制备的含增透膜的阴极在整个可见光区域的透射率均较差. 本文将阴极和增透膜的透射区域设计在蓝光波段, 即在蓝光材料的发光峰值附近具有最高透射率和最低反射率, 结合对器件结构进行设计, 使蓝光满足宽角干涉, 从而增强蓝光的强度进而改善白光的发光效率.

2 器件的制备与测量

本文中, TEWOLED 制备在覆盖一层 SiO₂ 的 Si 基底上. 在制作 OLED 前分别用丙酮、乙醇棉球对 Si 基底进行擦洗, 之后使用丙酮、乙醇、去离子水分别超声清洗 10 min, 氮气吹干后放在烘箱中烘干. 将处理干净的基底置于多源有机/金属蒸镀系统中抽真空, 待真空度达到 5×10^{-4} Pa 时依次生长 Ag 阳极、空穴注入层 MoO_x 、有机注入和传输层 *m*-MTDATA 和 N, N'-二苯基-N, N'-二(1-萘基)-1, 1'-联苯-4, 4'-二胺 (NPB)、发光层、电子注入和传输层 4, 7-二苯基-1, 10-菲罗啉 (Bphen)、Sm/Ag 组合阴极以及增透膜 ZnS. 器件结构和有机材料的分子结构如图 1 和图 2 所示, 其中红光磷光材料双(1-(苯基) 异喹啉) 乙酰丙酮合铱 (Ir(piq)₂(acac)) 和蓝光磷光材料 FIrpic 分别掺杂于母体 4, 4'-N, N'-二咔唑联苯 (CBP) 中. 本文通过对红光层和蓝光层的相对位置进行调整来观测 OLED 光电性能的变化情况. 图 1 中的膜层厚度由频率计实时监控. 器件的 EL 光谱、亮度、色度以及电流电压特性分别由 PR655 型亮度-光谱测试仪和 Keithley 2400 型电流源组成的测试系统同步测量. 上述测试都在室温手套箱中进行.

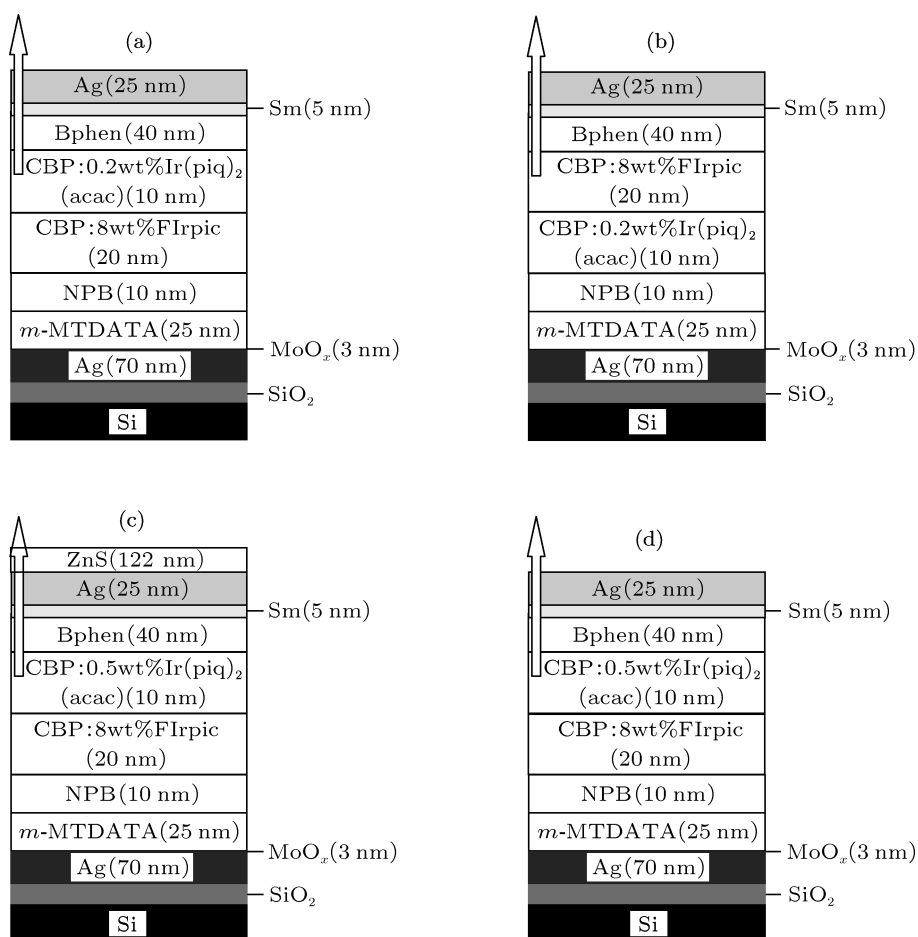


图1 TEWOLED 结构图 (a) 器件 A; (b) 器件 B; (c) 器件 C; (d) 器件 D

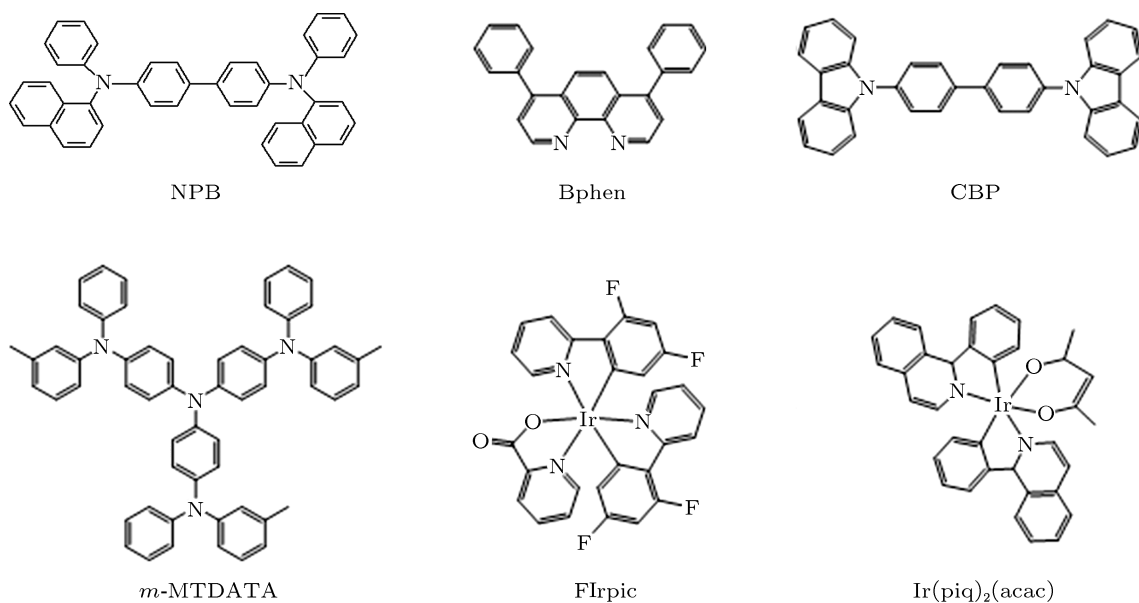


图2 有机材料的分子结构

3 转移矩阵理论

本文中红光和蓝光发光材料发出的光均经过 Bphen, Sm, Ag 和 ZnS 射出, 因此优化阴极的反射率和透射率时需考虑 Bphen (40 nm)/Sm (5 nm)/Ag (25 nm)/ZnS 多层结构的反射和透射状态. 在此, 多层结构 Bphen/Sm/Ag/ZnS 的反射率和透射率分别用 R 和 T 来表示, 可以用转移矩阵理论来推导 [28],

$$\begin{bmatrix} E_{\text{in}}^+ \\ E_{\text{in}}^- \end{bmatrix} = \frac{1}{t_{12}} \begin{bmatrix} e^{i\delta_1} & r_{12}e^{i\delta_1} \\ r_{12}e^{-i\delta_1} & e^{-i\delta_1} \end{bmatrix} \times \frac{1}{t_{23}} \begin{bmatrix} e^{i\delta_2} & r_{23}e^{i\delta_2} \\ r_{23}e^{-i\delta_2} & e^{-i\delta_2} \end{bmatrix} \times \frac{1}{t_{34}} \begin{bmatrix} e^{i\delta_3} & r_{34}e^{i\delta_3} \\ r_{34}e^{-i\delta_3} & e^{-i\delta_3} \end{bmatrix} \times \frac{1}{t_{45}} \begin{bmatrix} e^{i\delta_4} & r_{45}e^{i\delta_4} \\ r_{45}e^{-i\delta_4} & e^{-i\delta_4} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_{\text{out}}^+ \\ E_{\text{out}}^- \end{bmatrix}, \quad (1)$$

$$\begin{bmatrix} \mu_{11} & \mu_{12} \\ \mu_{21} & \mu_{22} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} e^{i\delta_1} & r_{12}e^{i\delta_1} \\ r_{12}e^{-i\delta_1} & e^{-i\delta_1} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} e^{i\delta_2} & r_{23}e^{i\delta_2} \\ r_{23}e^{-i\delta_2} & e^{-i\delta_2} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} e^{i\delta_3} & r_{34}e^{i\delta_3} \\ r_{34}e^{-i\delta_3} & e^{-i\delta_3} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} e^{i\delta_4} & r_{45}e^{i\delta_4} \\ r_{45}e^{-i\delta_4} & e^{-i\delta_4} \end{bmatrix}.$$

由于最后一层(空气层)不存在被反射回的平面波成分, 因此有 $E_{\text{out}}^- = 0$. (5) 式可进一步简化为

$$E_{\text{in}}^+ = \frac{\mu_{11}}{t_{12}t_{23}t_{34}t_{45}} E_{\text{out}}^+, \quad (6)$$

$$E_{\text{in}}^- = \frac{\mu_{21}}{t_{12}t_{23}t_{34}t_{45}} E_{\text{out}}^+, \quad (7)$$

由此可得出多层结构的复透射系数 t 和反射系数 r ,

$$t = E_{\text{out}}^+ / E_{\text{in}}^+ = t_{12}t_{23}t_{34}t_{45} / \mu_{11},$$

$$r = E_{\text{in}}^- / E_{\text{in}}^+ = \mu_{21} / \mu_{11}.$$

进一步可得出多层膜的透射率 T 和反射率 R ,

$$T = tt^* = \frac{N_5}{N_1} \left(\frac{t_{12}t_{23}t_{34}t_{45}}{\mu_{11}} \right) \left(\frac{t_{12}t_{23}t_{34}t_{45}}{\mu_{11}} \right)^*, \quad (8)$$

$$R = rr^* = \frac{\mu_{21}\mu_{21}^*}{\mu_{11}\mu_{11}^*}. \quad (9)$$

式中, E_{in}^+ 和 E_{out}^+ 分别为正传播方向(光由器件内部经阴极和 ZnS 射出的方向)上输入和输出平面波的复振幅, E_{in}^- 和 E_{out}^- 分别为负传播方向上输入和输出平面波的复振幅, $r_{mm'}$ 和 $t_{mm'}$ ($m = 1, 2, 3, 4$; $m' = m + 1$) 分别为相邻两层界面处的复反射系数和复透射系数, δ_m 为通过第 m 层膜时产生的相变. $r_{mm'}$, $t_{mm'}$ 和 δ_m 的表达式分别为

$$r_{mm'} = \frac{N_m - N_{m'}}{N_m + N_{m'}}, \quad (2)$$

$$t_{mm'} = \frac{2N_m}{N_m + N_{m'}}, \quad (3)$$

$$\delta_m = \frac{2\pi N_m d_m \cos \theta}{\lambda}, \quad (4)$$

式中, $m = 1, 2, 3, 4, 5$ 时分别代表 Bphen, Sm, Ag, ZnS 和空气, N_m 为第 m 层膜的复折射指数, d_m 为第 m 层膜的厚度, λ 为腔体的谐振波长, θ 为光传播方向与膜层法线之间的夹角.

(1) 式可进一步简化为

$$\begin{bmatrix} E_{\text{in}}^+ \\ E_{\text{in}}^- \end{bmatrix} = \frac{1}{t_{12}t_{23}t_{34}t_{45}} \begin{bmatrix} \mu_{11} & \mu_{12} \\ \mu_{21} & \mu_{22} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_{\text{out}}^+ \\ E_{\text{out}}^- \end{bmatrix}, \quad (5)$$

式中

4 实验结果及讨论

4.1 激子复合区域

图 3 为相同电压下器件 A 和器件 B 的 EL 光谱. 为了方便比较, 本文将峰强在 Firpic 的蓝光峰 (472 nm) 处进行了归一化. 比较图 3 中器件 A 与器件 B 的 EL 光谱可以看出, 发光层靠近电子传输层 Bphen 的器件具有较高的发光强度. 对此, 我们认为主要有以下三方面的原因: (1) CBP 母体虽然具有双极性, 但它传输空穴的能力更强 [29]. (2) Bphen 的电子迁移率为 $5.1 \times 10^{-4} \text{ cm}^{-2} \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$, NPB 的空穴迁移率为 $2.2 \times 10^{-3} \text{ cm}^{-2} \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$, 相对而言 Bphen 传导电子的能力比 NPB 传输空穴的能力差, 而且电子传输层 Bphen 较厚, 因此电子空穴复合区域位于发光层/Bphen 界面. (3) 如图 4 所示, CBP 的最低未占分子轨道 (LUMO) 和最高已占分子轨道 (HOMO) 能级分别为 2.3 和 5.9 eV, 与 Bphen

的 LUMO 能级 (3.0 eV) 和 HOMO 能级 (6.4 eV) 相比, 对于电子和空穴均有较大的注入势垒, 从而导致激子复合区域主要位于 CBP/Bphen 界面. 因此, 器件 A 和器件 B 的 EL 光谱分别出现红光和蓝光相对较强的现象.

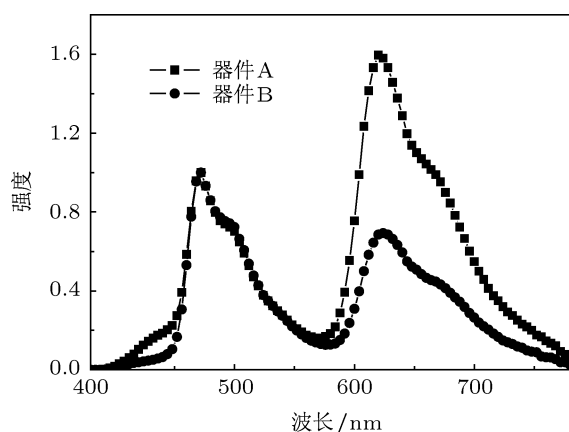


图3 相同电压下器件 A 和器件 B 的归一化 EL 光谱

4.2 器件结构优化

器件 A 中蓝光强度相对较弱, 红光强度相对

较强, 由于红光材料 Ir(piq)₂(acac) 的发光效率较低, 器件 A 的效率也相对较低. 为了改善器件整体的发光性能, 我们从两个方面对器件进行了改进. 一是设计蓝光材料在器件中的位置, 即蓝光材料相对反射阳极的位置, 以获得干涉增强的蓝光, 在此主要利用宽角干涉效应^[30], 器件 A 中的蓝光材料位置满足在 472 nm 波长处的宽角干涉相长. 此外, 在器件 A 阴极表面引入一层 ZnS 增透膜, 该增透膜的厚度要满足阴极在蓝光波段范围内具有较低的反射, 从而达到增强透射光中蓝光强度的目的. 利用转移矩阵理论对 Bphen (40 nm)/Sm (5 nm)/Ag (25 nm)/ZnS 多层膜进行计算, 结果表明, 当 ZnS 厚度为 122 nm 时, 上述膜层在蓝光材料 FIrpic 的 EL 光谱峰值波长 472 nm 处具有较低的反射率 (19.5%) 和较高的透射率 (68.3%), 如图 5 所示. 这已达到了我们的要求. 因此, 我们在器件 A 的基础上制备了白光器件 C. 实验表明, 蓝光的相对强度得到了大幅度改善, 甚至超过了红光强度, 为了获得色度较好的白光, 我们进一步增加了红光的掺杂浓度 (从 0.2% 增加到 0.5%). 器件 C 的结构如图 1 所示, 不含 ZnS 增透膜的同结构器件 D 作为参比器件.

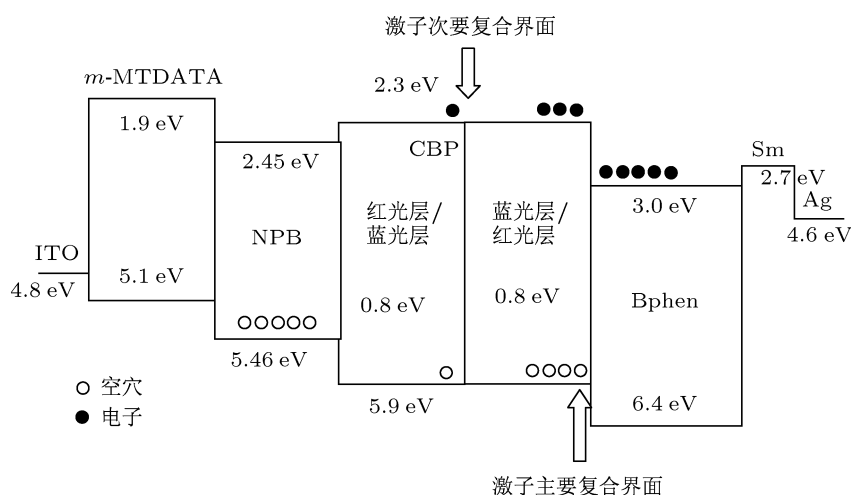


图4 器件的能级结构示意图

4.3 亮度-电流密度-电压 (L-J-V) 特性

图 6 所示为器件 C 和器件 D 的 L-J-V 特性曲线. 从图 6 可以看出, ZnS 增透膜的引入基本上未改变器件的导电性能, 然而随着 ZnS 薄膜的引入,

器件的亮度有了很大提高, 在高驱动电压时亮度的提高效果更为明显. 生长了 122 nm 厚 ZnS 增透膜的器件 C 的最高亮度由对比器件 D (无增透膜) 的 6355 cd/m² 提高到 9213 cd/m², 是器件 D 的 1.45 倍. ZnS 增透膜的引入也使得器件的效率有了较

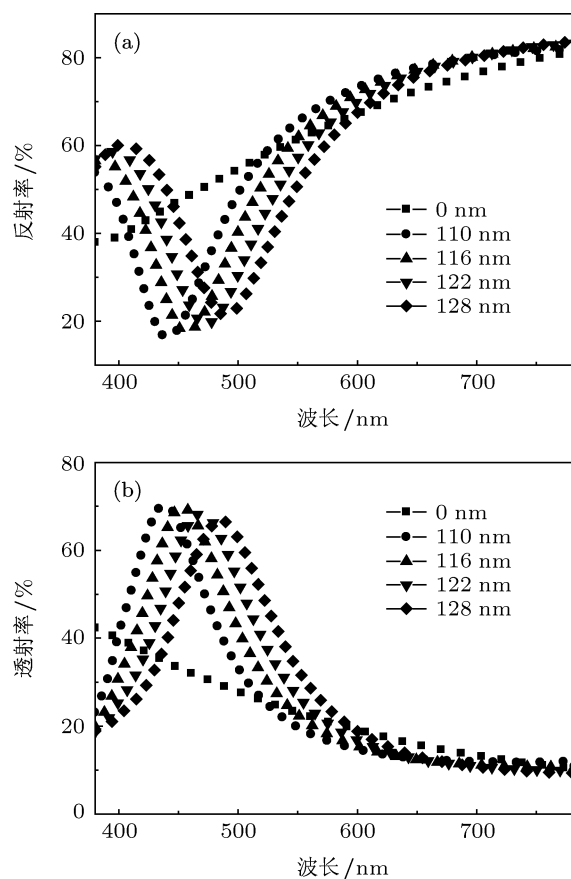


图5 引入不同厚度的 ZnS 增透膜前后, Bphen (40 nm)/Sm (5 nm)/Ag (25 nm) 多层膜的反射率和透射率曲线 (a) 反射率; (b) 透射率

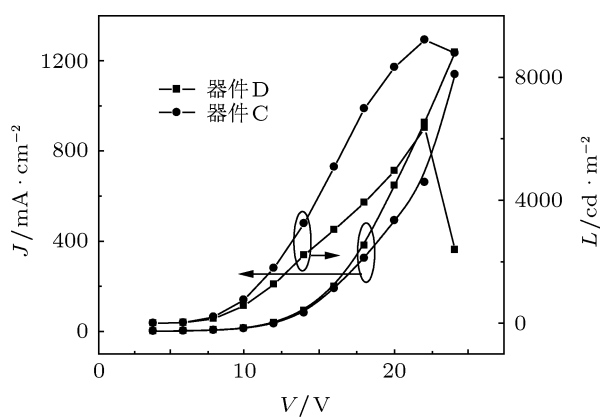


图6 器件 C 和器件 D 的 $L-J-V$ 特性

大的改善, 如图 7 器件电流效率随电流密度的变化曲线所示. 从图 7 可以看出, 引入 ZnS 增透膜的器件 C 的最大效率达到 3 cd/A, 是器件 D 的 1.43 倍. ZnS 作为增透膜对器件蓝绿光波段的发光起到增透作用, 将原本抑制的蓝光释放出来, 虽然增透膜对红光部分存在抑制作用, 但是红光掺杂浓度的增

大可以抵消阴极反射的损失. 因此, 蒸镀增透膜后器件 C 的发光强度和效率均得到提高.

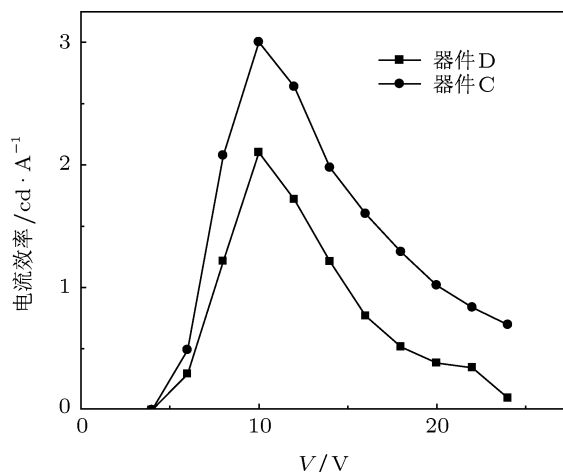


图7 器件 C 和器件 D 的电流效率

4.4 EL 光谱

ZnS 对蓝光波段的增透最终改变了器件的 EL 光谱, 使得器件的色坐标移向白光区, 得到了白光发射. 器件 C 和器件 D 的 EL 光谱如图 8 所示. 图 8(a) 为 0° 视角下器件 C 和器件 D 在驱动电压为 10 V 时的归一化 EL 光谱. 从图 8(a) 可以看出, 器件 D 在红光区域发光很强, 而在蓝光区域相对要弱很多, 这主要是器件 D 比器件 A 中红光材料 $\text{Ir}(\text{piq})_2(\text{acac})$ 掺杂浓度增大所致. 随着 122 nm 厚 ZnS 增透膜的使用, 器件 C 在 468 nm 左右的蓝光区域出现了一个明显的发光峰, 这是由于我们设计的增透膜主要针对蓝光发光区域进行增透, 从而使抑制在器件内部的大部分蓝光释放出来. 蓝光成分包括两部分, 一部分来自磷光材料 Flrpic 的发光, 峰位在 472 nm 附近, 另一部分来自空穴传输层 NPB 的发光, NPB 本身可发射深蓝光, 峰位在 436 nm 附近. 随着电压的增加, 器件 C 的色坐标发生蓝移, 我们认为这种现象是由于驱动电压的增加导致了激子复合区域的变化. 器件的色坐标从 8 V 的 (0.47, 0.38) 变化到 15 V 的 (0.40, 0.37), 逐渐向白光等能点 (0.33, 0.33) 靠近.

图 8(b) 为器件 C 在 10 V 驱动电压下随角度变化的归一化 EL 光谱. 从图 8(b) 可以看出, 光谱随角度的变化相对较小, 尤其是在 30° 以内, 光谱几乎不随角度发生变化, 蓝光峰位略有 4 nm 的蓝移. 随着角度继续增大, 光谱蓝移程度逐渐变大, 当角度从 0° 变化到 60° 时, 蓝光峰位蓝移了 12 nm,

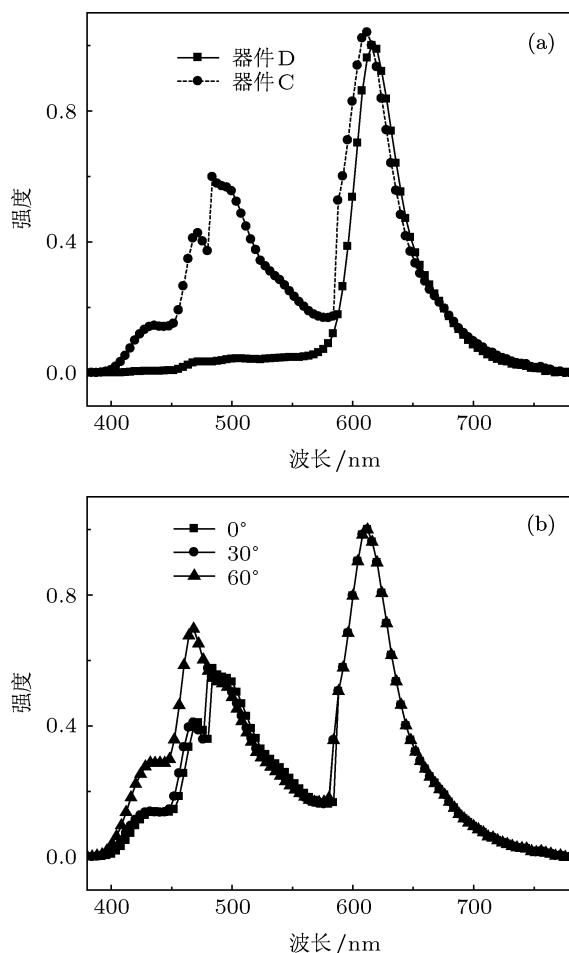


图8 器件的归一化 EL 光谱 (a) 器件 C 和器件 D 在 0° 视角下的归一化 EL 光谱; (b) 器件 C 随角度变化的归一化 EL 光谱

相应色坐标从 (0.41, 0.37) 变化到 (0.39, 0.37), 变化了 (0.02, 0). 从整体看, 这样的蓝移程度并不明

显, 色坐标对角度的依赖性较小, 说明我们制作的 TEWOLED 适合于直视型和较大角度显示领域的应用.

本文中的蓝光母体 CBP 的三线态能级低于蓝光发光材料 FIrpic 的三线态能级, 因此需要吸收一定的能量才能在 CBP 与 FIrpic 之间产生有效的能量转移, 这限制了蓝光的发光效率. 使用三线态能级更宽的 CDBP, 2, 6- 双 (3-(咪唑基 -9-) 苯基) 吡啶或 2- 二苯基磷螺芴替代 CBP 作为 FIrpic 的母体材料, 同时使用高效的红光材料双 (2- 甲基二苯并 -[f, h] 喹啉) 乙酰丙酮合铱或黄光材料 (F-BT)₂Ir(acac) 替代发光效率较低的 Ir(piq)₂(acac), 有望大幅度提升顶发射白光的发光效率. 进一步的实验正在进行之中.

5 结论

制备了 TEWOLED, 探讨了激子的主要复合区域. 引入了高折射率的 ZnS 增透膜, 利用转移矩阵理论对增透膜厚度进行了优化, 利用宽角干涉方法改善了白光组分中蓝光的强度, 获得了亮度与效率较佳的白光, 最大亮度和效率分别达到 9213 cd/m^2 和 3 cd/A . 色坐标位于白光区, 接近白光等能点. 此外, 该白光具有良好的视角稳定性, 在 0° — 60° 范围内色坐标仅变化 (0.02, 0). 这种色度良好、视角稳定的 TEWOLED 在显示和照明领域有着广阔的应用前景.

- [1] Tang C W, Van Slyke S A 1987 *Appl. Phys. Lett.* **51** 913
- [2] Burroughes J H 1990 *Nature* **347** 539
- [3] Gustafsson G, Cao Y, Treacy G M, Klavetter F, Colaneri N, Heeger A J 1992 *Nature* **357** 447
- [4] Cao Y, Treacy G M, Smith P, Heeger A J 1992 *Appl. Phys. Lett.* **60** 2711
- [5] Gu G, Shen Z, Burrows P E, Forrest S R 1997 *Adv. Mater.* **9** 725
- [6] Yang Y, Chen S F, Xie J, Chen C Y, Shao M, Guo X, Huang W 2011 *Acta Phys. Sin.* **60** 047809 (in Chinese) [杨洋, 陈淑芬, 谢军, 陈春燕, 邵茗, 郭旭, 黄维 2011 物理学报 **60** 047809]
- [7] Xu X M, Peng J C, Li H J, Qu S, Zhao C J, Luo X H 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 286 (in Chinese) [许雪梅, 彭景翠, 李宏建, 瞿述, 赵楚军, 罗小华 2004 物理学报 **53** 286]
- [8] Kido J, Shionoya H, Nagai K 1995 *Appl. Phys. Lett.* **67** 2281
- [9] Feng J, Li F, Gao W B, Liu S Y, Liu Y, Wang Y 2001 *Appl. Phys. Lett.* **78** 3947
- [10] Chen S F, Wu Z J, Zhao Y, Li C N, Hou J Y, Liu S Y 2005 *Org. Electron.* **6** 111
- [11] Dodabalapur A, Rothberg L J, Miller T M 1994 *Appl. Phys. Lett.* **65** 2308
- [12] Parthasarathy G, Gu G, Forrest S R 1999 *Adv. Mater.* **11** 907
- [13] Riel H, Karg S, Beierlein T, Ruhstaller B, Rieβ W 2003 *Appl. Phys. Lett.* **82** 466
- [14] Dobbertin T, Kroeger M, Heithecker D, Schneider D, Metzendorf D, Neuner H, Becker E, Johannes H H, Kowalsky W 2003 *Appl. Phys. Lett.* **82** 284
- [15] Chen S F, Deng L L, Xie J, Peng L, Xie L H, Fan Q L, Huang W 2010 *Adv. Mater.* **22** 5227
- [16] Kanno H, Sun Y R, Forrest S R 2005 *Appl. Phys. Lett.* **86** 263502
- [17] Hsu S F, Lee C C, Hwang S W, Chen C H 2005 *Appl. Phys. Lett.* **86** 253508
- [18] Zhu X L, Sun J X, Yu X M, Wong M, Kwok H S 2007 *Jpn. J. Appl. Phys.* **46** 4054
- [19] Lee M T, Tseng M R 2008 *Curr. Appl. Phys.* **8** 616

- [20] Kim M S, Jeon C H, Lim J T, Yeom G Y 2008 *Thin Solid Films* **11** 3590
- [21] Ji W Y, Zhang L T, Gao R X, Zhang L M, Xie W F, Zhang H Z, Li B 2008 *Opt. Express* **16** 15489
- [22] Thomschke M, Nitsche R, Furno M, Leo K 2009 *Appl. Phys. Lett.* **94** 083303
- [23] Ji W Y, Zhang L T, Zhang T Y, Xie W F, Zhang H Z 2010 *Org. Electron.* **11** 202
- [24] Xie G H, Zhang Z S, Xue Q, Zhang S M, Zhao L, Luo Y, Chen P, Quan B F, Zhao Y, Liu S Y 2010 *Org. Electron.* **11** 2055
- [25] Chen S M, Kwok H S 2011 *Org. Electron.* **12** 677
- [26] Ji W Y, Zhao J L, Sun Z C, Xie W F 2011 *Org. Electron.* **12** 1137
- [27] Ma J, Piao X C, Liu J, Zhang L T, Zhang T Y, Liu M, Li T, Xie W F, Cui H N 2011 *Org. Electron.* **12** 923
- [28] Chen S F, Xie W F, Meng Y L, Chen P, Zhao Y, Liu S Y 2008 *J. Appl. Phys.* **103** 054506
- [29] Sun Y, Noel C, Hiroshi K, Biwu M, Thompson M E, Forrest S R 2006 *Nature* **440** 908
- [30] Xie J, Chen C Y, Chen S F, Yang Y, Shao M, Guo X, Fan Q L, Huang W 2011 *Org. Electron.* **12** 322

Top-emitting white organic light-emitting diodes based on a ZnS light outcoupling layer*

Chen Shu-Fen Shao Ming Guo Xu Qian Yan Shi Nai-En Xie Ling-Hai
Yang Yang Huang Wei[†]

(Key Laboratory for Organic Electronics and Information Displays of Jiangsu Province, Institute of Advanced Materials, Nanjing University of Posts and Telecommunications, Nanjing 210046, China)

(Received 23 May 2011; revised manuscript received 2 September 2011)

Abstract

Top-emitting white organic light-emitting diode (TEWOLED) has potential applications in lighting and full color displays. Microcavity effect in TEWOLED restrains the realization of the white emission with excellent optical and electric performances. In this paper, a ZnS film with a high refractive index used as a light outcoupling layer is introduced into the metal cathode to enhance its transmittivity to a maximal value in the blue light wavelength region. In addition, transfer matrix theory is utilized to optimize the thicknesses of the cathode and the ZnS outcoupling layer and the wide-angle interference is used to design the position of the blue emission layer inside the organic light-emitting diode. Based on the above work, the white light with relatively high luminous efficiency, good color purity, and small CIE coordinate change is acquired. The corresponding luminance and current efficiency are 9213 cd/m² and 3 cd/A, respectively. The CIE coordinates belong to the white emission and are near the white light equal-energy point. The white emission also shows stable spectra with respect to the observation angle, with a limited CIE coordinate change of (0.02, 0) for a large observation angle change from 0° to 60°.

Keywords: white organic light-emitting diodes, top-emitting, light outcoupling layer, transfer matrix theory

PACS: 78.60.Fi, 78.20.-e, 73.21.-b, 73.61.Ph

* Project supported by the State Key Development Program for Basic Research of China (Grant No. 2009CB930600), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 60907047, 60977024, 21101095, 20974046, 21003076, 51173081, 61136003), the Specialized Research Foundation for the Doctoral Program of Higher Education of China (Grant No. 20093223120003), the Natural Science Foundation of Jiangsu Province, China (Grant No. BK2009423), the Natural Science Foundation of Institution of Higher Education of Jiangsu Province, China (Grant Nos. SJ209003, 09KJB150009, 10KJB510013, TJ209035), the "Qing Lan" Program of Jiangsu Province, China, and the Climbing Program of Nanjing University of Posts and Telecommunications, China (Grant No. NY 210015).

[†] E-mail: wei-huang@njupt.edu.cn