

非周期微纳结构增强有机发光二极管光耦合输出的研究进展

刘萌娇 张新稳 王炯 秦雅博 陈月花 黄维

Research progress of light out-coupling inorganic light-emitting diodes with non-period micro/nanostructures

Liu Meng-Jiao Zhang Xin-Wen Wang Jiong Qin Ya-Bo Chen Yue-Hua Huang Wei

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 67, 207801 (2018) DOI: 10.7498/aps.67.20181209

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.67.20181209>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2018/V67/I20>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

[图形硅衬底 GaN 基发光二极管薄膜去除衬底及 AlN 缓冲层后单个图形内微区发光及应力变化的研究](#)

Changes of micro zone luminescent properties and stress of GaN-based light emitting diode film grown on patterned silicon substrate, induced by the removal of the substrate and AlN buffer layer

物理学报.2015, 64(18): 187801 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.187801>

[基于溶液加工小分子材料发光层的有机-无机复合发光器件](#)

Phosphorescent hybrid organic-inorganic light emitting devices with solution-processed small molecule emissive layers

物理学报.2015, 64(16): 167801 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.167801>

[利用发光层梯度掺杂改善顶发射白光有机发光二极管光谱的稳定性](#)

Improvement of the color-stability in top-emitting white organic light-emitting diodes by utilizing step-doping in emission layers

物理学报.2015, 64(9): 097801 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.097801>

[硅基板和铜基板垂直结构 GaN 基 LED 变温变电流发光性能的研究](#)

Electroluminescence properties of vertical structure GaN based LED on silicon and copper submount at different temperatures and current densities

物理学报.2014, 63(21): 217806 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.217806>

[PCDTBT 作为发光层的有机电致发光器件研究](#)

Organic light-emitting devices based on PCDTBT as emitting layer

物理学报.2014, 63(16): 167802 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.167802>

综述

非周期微纳结构增强有机发光二极管 光耦合输出的研究进展*

刘萌娇 张新稳[†] 王炯 秦雅博 陈月花 黄维

(南京邮电大学信息材料与纳米技术研究院, 有机电子与信息显示国家重点实验室培育基地, 南京 210023)

(2018年6月21日收到; 2018年7月18日收到修改稿)

有机发光二极管(OLED)具有功耗低、重量轻、色域宽、响应时间快及对比度高等优点,在全彩平板显示和固态照明等领域均显现出巨大的应用潜力,受到人们的广泛关注.然而,较低的光输出效率使得器件的外量子效率远低于内量子效率,这严重制约了OLED器件的发展和应用.因此如何提高OLED器件的光耦合输出效率已成为备受关注的研究课题.本文主要介绍了采用非周期微纳结构提高OLED器件光耦合输出效率的最新研究进展,对随机微纳透镜结构、光散射介质层、聚合物多孔散射薄膜、随机凹凸波纹结构及随机褶皱结构等多种对器件亮度分布和光谱稳定性无明显影响的光耦合输出技术进行了总结和讨论.最后,对提高OLED器件光耦合输出研究做了总结和展望.

关键词: 有机发光二极管, 光耦合输出, 非周期微纳结构

PACS: 78.66.Qn, 78.60.Fi, 78.20.Bh, 42.25.Gy

DOI: 10.7498/aps.67.20181209

1 引言

有机发光二极管(organic light emitting diode, OLED)具有许多独特的优良特性,包括响应时间快、色域宽、对比度高、功耗低、重量轻、自发光、能实现透明和柔性显示等^[1-5],可应用于电视、平板电脑及智能家电等全彩平板显示器和固态照明光源,因此受到学术界和商业界的广泛关注^[6-9].长期以来,OLED器件性能改善研究主要是围绕如何有效提高器件发光效率这一核心问题开展的,外量子效率(η_{ext})是评价OLED器件性能的一个重要参数,其大小主要由内量子效率(η_{int})和器件的光耦合输出效率(η_{out})所决定,其计算公式为:

$$\eta_{\text{ext}} = \eta_{\text{int}} \eta_{\text{out}}, \quad (1)$$

内量子效率计算公式为

$$\eta_{\text{int}} = \gamma \eta_{\text{S/T}} \eta_{\text{eff}}, \quad (2)$$

其中 γ 是电荷平衡因子,通过采用多层器件结构,有效平衡载流子注入,提高载流子复合效率,可使 γ 尽量趋近于1; $\eta_{\text{S/T}}$ 是自旋统计允许辐射衰减的激子比例(对于荧光发射体,理论上 $\eta_{\text{S/T}} = 0.25$;对于磷光和热活化延迟荧光发射体,理论上 $\eta_{\text{S/T}} = 1$). η_{eff} 是腔体结构中发射体的有效辐射量子产率^[10],通过优化有机层的厚度或改变发射区的位置, η_{eff} 也可趋近于1.因此,通过优化器件结构,采用磷光或热激活延迟荧光发光材料^[11-13],同时实现单线态和三线态激子发光,器件的内量子效率已接近100%^[14-18].然而,由于较低的光耦合输出效率,使得大部分辐射光子被局限在器件内部,导致OLED器件的外量子效率通常只有20%左右^[19-21],这严重制约了OLED器件的发展和应用.

* 国家自然科学基金(批准号: 61774088, 61705112)、国家重点基础研究计划(批准号: 2014CB648300)、江苏省自然科学基金(批准号: BK20170913, BK20161519)和江苏高校优势学科建设工程(批准号: YX03001)资助的课题.

[†] 通信作者. E-mail: iamxwzhang@njupt.edu.cn

因此, 如何提高器件的光耦合输出效率成为目前国际上的一个研究热点 [22–24].

2 OLED 器件光损失

引起 OLED 器件光损失的主要原因是器件各功能层的折射率不匹配, 光线在不同折射率功能层的界面处因为全反射造成发光层发出的光子大部分局限在器件内部而无法逸出器件. 对于常规底发射 OLED 器件, 由于基底(玻璃, 折射率 $n \approx 1.5$)和外部介质(空气, $n = 1$)之间的折射率失配问题, 大于临界角出射的光子在基底/空气界面会发生全反射, 只有部分光可以逃逸到空气中, 导致约 30% 的光被局限在基底中, 称为基底模式光损失. 另一个主要的光损失发生于透明电极和有机层. 由于透明电极的总厚度约为几百纳米, 其折射率(通常为 1.7–2.1 [25])明显高于基底的折射率, 因此, OLED 器件的堆叠结构会形成平面波导, 导致约 20% 的光被局限在透明电极/有机层(波导模式)中, 受限光

也可以通过器件的边缘逸出. 另外, 在有机/金属界面, 表面等离子激元效应使得部分光子产生非辐射耦合 [26,27], 造成约为 30% 的光损失. 如图 1(a) 所示, 只有部分光能从基底正面出射到空气中, 约有 80% 的光线被限制在了器件内部 [28–30]. 由此可见, 利用光耦合输出技术, 理论上 OLED 器件的外量子效率可以有 4 倍的提升空间. 因此, 抑制基底模式、波导模式和界面等离子体激元模式光损失, 提高器件的光耦合输出效率, 对于 OLED 器件外量子效率提升至关重要. 图 1(b) 是不同厚度电子传输层底发射 OLED 器件所有光损失模式的分布情况 [24]. 当电子传输层厚度较小时, 波导模式受到抑制, 界面等离子体造成绝大部分的光损失; 相反, 当电子传输层厚度逐渐增大时, 界面等离子体模式受到抑制, 波导模式成为光损失的主要部分. 由此可见, 电子传输层厚度的变化会引起 OLED 器件的光损失模式发生变化, 但器件的最大光耦合输出效率仍然只有 20% 左右.

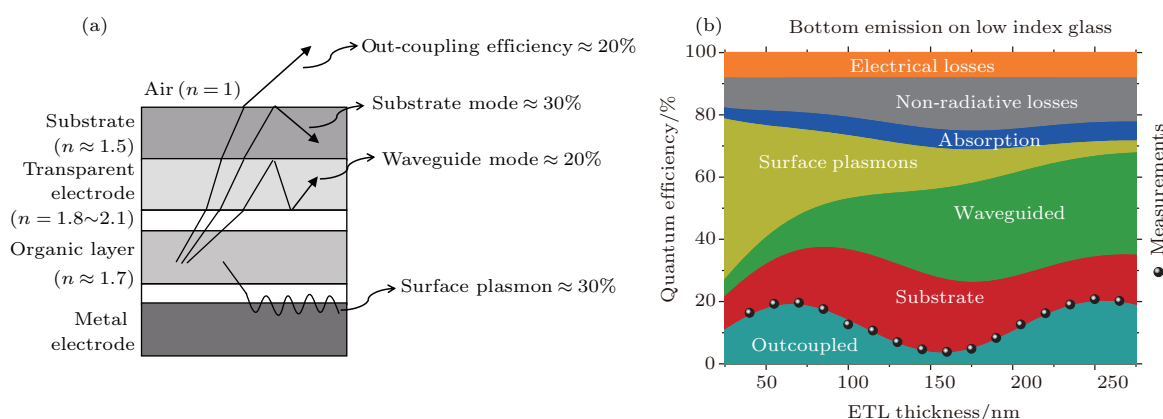


图 1 OLED 器件光损失的示意图 (a) 底发射 OLED 器件各种模式的光损失; (b) 不同电子传输层厚度下底发射 OLED 器件各种模式光损失分布图 [24]

Fig. 1. Light out-coupling losses of OLED: (a) Various kinds of light out-coupling losses in a bottom-emitting OLED; (b) distribution of the different light out-coupling losses in a bottom-emitting OLED as a function of electron transport layer thickness [24].

3 周期性微纳结构对器件性能的影响

通过引入周期性微纳结构可以有效提高 OLED 器件的光耦合输出效率. 如图 2 所示, 常用的周期性微纳结构有光子晶体 [31–33]、微透镜阵列 [34,35] 及周期性光栅等 [36–37].

2003 年, Lee 等 [33] 将二维光子晶体引入到 OLED 器件内部, 通过调整晶格常数、深度和周期,

器件的光耦合输出效率提高了 50%, 并且不影响器件的电学特性. Do 等 [38] 将二维 SiO_2 ($n = 1.48$)/ SiN_x ($n = 1.95$) 光子晶体嵌入到基底与 ITO 电极之间, 光耦合输出效率提升了 38%. Möller 和 Forrest [26] 将直径为 $10 \mu\text{m}$ 的微透镜阵列黏附在玻璃基底上, 外量子效率有 50% 的提高. Yang 等 [39] 通过卷对卷模板转印工艺制备微透镜阵列, 并将其附着在玻璃基板上, 与常规器件相比, 光输出耦合效率可以提高 1.6 倍. Gifford 和 Hall [40] 利用周期

性布拉格光栅结构耦合金属电极表面等离子体激发元,有效增强了绿光 OLED 器件的光耦合输出效率.吉林大学的孙洪波教授和冯晶教授课题组采用光刻方法制备了周期为 350 nm 的一维、二维光栅,而后蒸镀 Ag 作为阳极,制备了红光顶发射 OLED 器件,外量子效率分别提升了 30% 和 40% [37]. 从这

些研究进展来看,尽管使用周期性的微纳结构可以增强器件的光耦合输出效率,但由于其结构是规则有序的,在宽视角下会严重影响器件的亮度均匀性和光谱稳定性,即随着观测角的改变,器件的发光强度会偏离朗伯发射,同时器件的发射光谱发生移动,不适用于实际显示和照明应用.

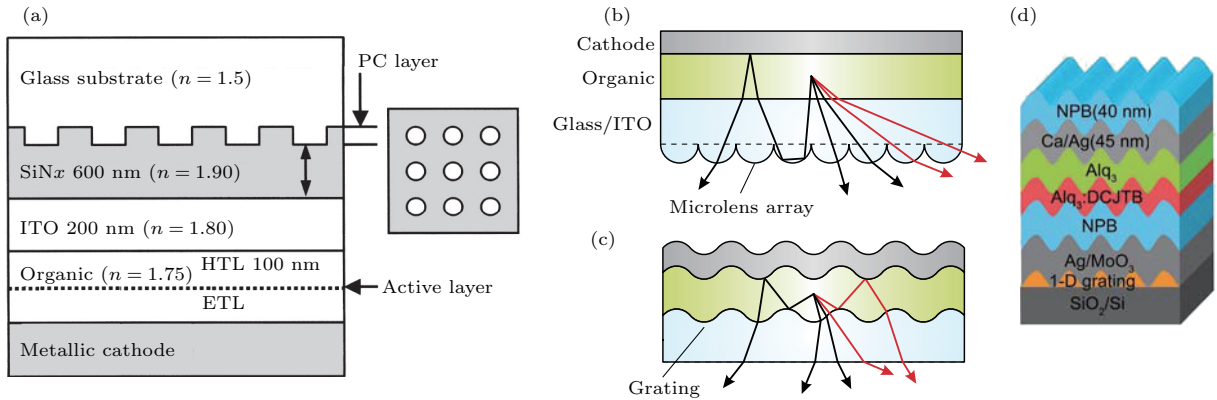


图 2 不同结构的 OLED 器件 (a) 采用二维光子晶体结构的 OLED 器件 [33]; (b) 采用周期性微透镜阵列取基底模式光示意图 [35]; (c) 通过周期性光栅耦合输出光的内部散射结构示意图 [35]; (d) 一维周期性光栅 OLED 器件结构图 [37]

Fig. 2. OLED with various structures: (a) Device structure of OLED with two-dimensional photonic crystal [33]; (b) schematic illustration of substrate mode extraction by a periodic microlens array [35]; (c) schematic diagram of an internal scattering structure by a periodic grating out-coupling light [35]; (d) device structure of OLED with a periodic one-dimensional grating [37].

3.1 亮度均匀性

周期性微纳光耦合输出结构对器件亮度增强具有一定的角度选择性,造成出光面光强分布不均 [41],即随着观测角度的改变,器件发光强度会选择性的增强,亮度增强主要出现在法线方向附近,随着角度的增加,亮度增强严重偏离朗伯发射 [42]. 基于 8-羟基喹啉铝 (8-Hydroxyquinoline aluminum salt, Alq₃) 的绿光 OLED 器件亮度随角度变化的示意图,如图 3 所示 [43],平面结构器件在不同观测角度下的光发射接近于理想的朗伯发射,而采用周期

性的微透镜阵列器件随着观测角的增加,光发射明显偏离朗伯发射,这将导致显示器件存在视角问题,不利于实际应用 [8]. 而非周期的微纳结构由于其结构排列是随机的,有助于光线在各个方向上耦合输出增强,从而获得宽角度均匀增强的亮度分布,更接近于朗伯发射 [44,45].

3.2 光谱稳定性

另外,周期性微纳光耦合输出结构会导致器件的发射光谱严重失真 [46-49],不仅会破坏器件本征的发光颜色,而且还会改变色彩感知 [50]. 非周期微纳结构由于其排列是无序随机的,因此可以在可见光范围内发光颜色的稳定性 [51,52],即随着观测角度的变化,器件发射光谱不会发生移动且色坐标稳定,这对于显示与照明应用来说是非常重要的. 基于平面、光栅和非周期微纳结构的红绿蓝 OLED 器件的归一化电致发光光谱如图 4 所示 [53],平面结构器件(图 4(a))在 0°—70° 观测角范围内的发射光谱几乎没有变化. 然而,使用周期性的一维和二维光栅的器件存在严重的角度依赖性(图 4(b)和图 4(c)),在大视角(例如 70°)下出现了

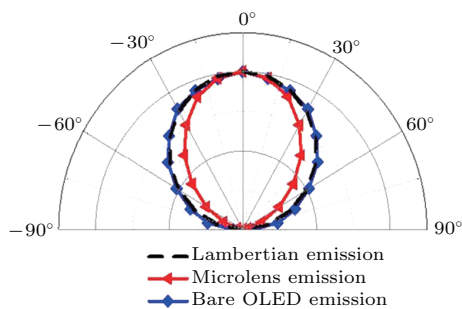


图 3 绿光 OLED 器件在不同视角下亮度分布图 [43]
Fig. 3. Luminance distribution of green OLEDs at the different viewing angles [43].

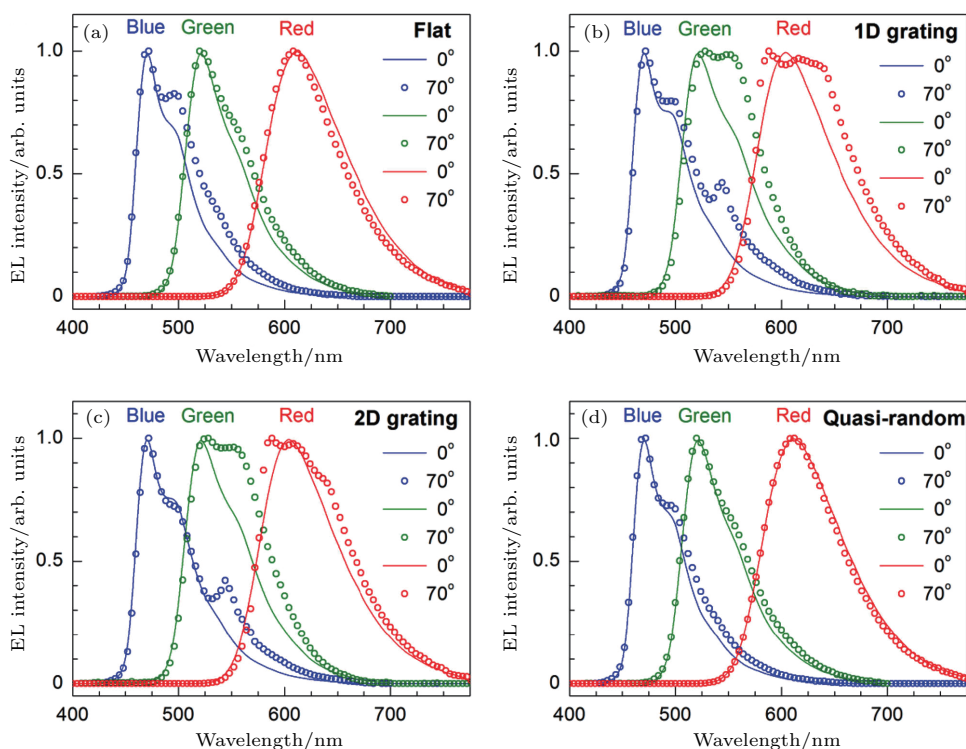


图4 采用不同光耦合输出结构的红绿蓝 OLED 器件在不同观测角下的电致发光光谱图 [53] (a) 平面结构; (b) 一维光栅结构; (c) 二维光栅结构; (d) 随机纳米结构

Fig. 4. Electroluminescence spectra of red, green, and blue OLEDs with different light out-coupling structures at the different viewing angles [53]: (a) Flat structure; (b) 1D grating; (c) 2D grating; (d) random nanostructure.

一个明显的新峰值. 使用非周期微纳结构的器件在不同视角下获得几乎相同的电致发光光谱(图4(d)), 由于其结构的随机性, 发射光谱不依赖于观测角度. 因此采用非周期微纳光耦合输出结构能够有效减少发射光谱随观测角度的偏移, 提高器件发光颜色的空间稳定性.

4 非周期微纳结构增强器件光耦合输出

为了保证色彩质量以及在实际显示和照明中的应用, 必须稳定发光器件在不同视角下的发射光谱, 提升各个角度的出光均匀性, 因此非周期的微纳结构更适用于提高器件的光耦合输出 [54-57]. 目前已有多种采用非周期微纳结构提高 OLED 器件光耦合输出效率的方法, 例如使用波纹状结构 [58]、加入散射介质 [59,60]、随机褶皱结构以及无序的微透镜结构等 [52,61-64], 将其结合在器件中, 可以有效抑制器件的光损失, 提高器件的光耦合输出效率 [65-67]. 接下来, 我们将从三种不同的光损失模式分别探讨非周期微纳结构提高 OLED 器件光耦

合输出效率的方法.

4.1 抑制基底模式光损失

抑制基底模式光损失的方法主要是通过对器件基底外表面进行处理与修饰, 改变基底/空气界面特性, 减少界面光线全反射, 这些方法主要包括随机微纳透镜结构、光散射介质层、表面粗化及聚合物多孔膜结构等.

4.1.1 随机微纳透镜结构

在基底表面黏附无序的透镜结构或通过软纳米压印的方式直接在基底上形成非周期的微纳透镜结构, 能够改变入射光线的角度, 使其小于临界角, 减少全反射, 提高光耦合输出效率.

2014年, Moon 课题组 [42] 利用聚苯乙烯 (polystyrene, PS) 和聚乙二醇 (polyethylene glycol, PEG) 的混合溶液相分离制备随机的凹凸结构作为模板, 使用紫外线 (ultraviolet, UV) 固化胶进行转印得到随机分布的凸透镜结构, 其制备过程如图 5 (a) 所示. 随后他们将其结合到器件基底背面, 不仅可以提取基底模式所限制的光, 使器件的外量子

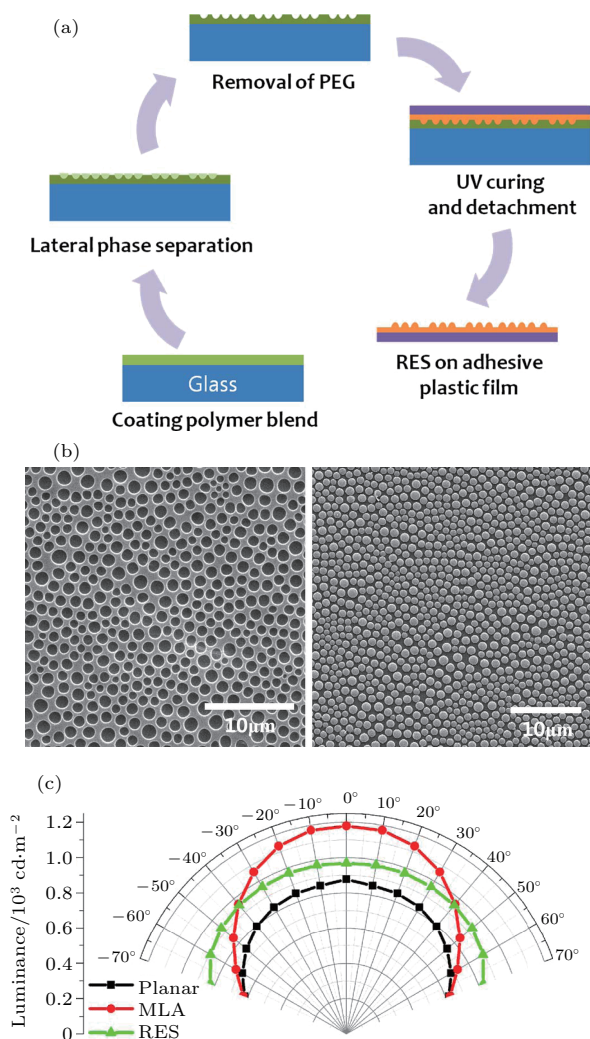


图5 随机透镜结构器件的制备过程及其扫描电镜图和亮度分布图 (a) 制备相分离薄膜并将其转移到塑料薄膜上; (b) PS与PEG相分离薄膜扫描电镜图(左)及PDMS转印后的随机透镜结构扫描电镜图(右); (c) 平面结构、微透镜阵列以及随机透镜结构器件的亮度分布图^[42]

Fig. 5. Fabrication process of random lens structure and the scanning electron microscope images and luminance distribution of the device: (a) Fabrication of phase separation film and transferring the pattern to an adhesive plastic film; (b) scanning electron microscope images of phase separation film (left) and random lens structure after PDMS transfer (right); (c) luminance distribution of the device with planar structure, microlens array and random lens structure^[42].

效率提高20%，并且由于透镜与空气界面的光散射效应，在0°—70°的视角范围内亮度分布均匀且光谱稳定，无角度依赖性(图5(c))。2016年，该课题组通过改变PEG的掺杂浓度得到不同密度的非周期透镜结构，同样获得了近似朗伯发射的绿色磷光OLED器件^[50]。2017年，他们采用同样的处理方法，将此透镜结构结合到底发射的绿光器件中，外

量子效率从8.9%提升到17.9%^[68]。Suh等^[51]在玻璃基板上制备了多孔聚合物膜用作模板，再加入聚二甲基硅氧烷(poly(dimethylsiloxane), PDMS)进行转印，得到随机分布的微透镜结构，其制备过程如图6所示。将微透镜结合到ITO玻璃背面，器件的外量子效率提高了28.5%，并且其像素模糊度可忽略不计，特别适合于显示应用。如图7所示，Kim等^[69]通过采用简单的浸涂工艺在玻璃基板上自组装不同直径的PS纳米粒子，然后利用PDMS进行固化转印，随后将Al₂O₃纳米粒子嵌入到有机-无机杂化的溶胶中，通过PDMS模板将不规则的

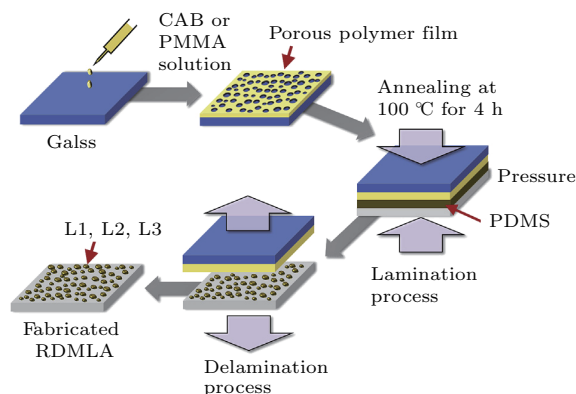


图6 制备随机分布的微透镜结构示意图^[51]

Fig. 6. Schematic diagram for the preparation of randomly distributed microlens structure^[51].

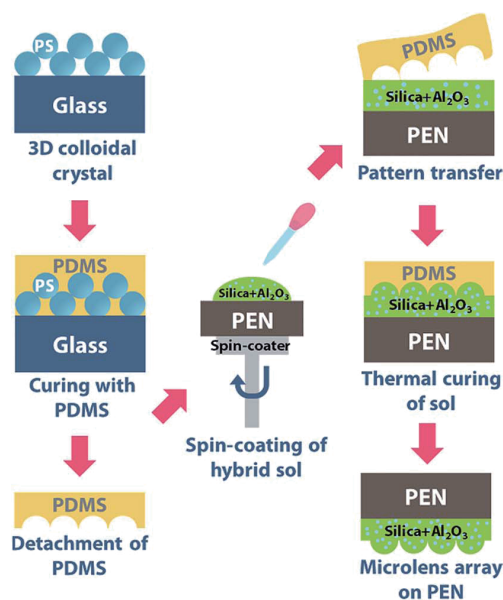


图7 具有Al₂O₃纳米粒子的微透镜结构制备过程示意图^[69]
Fig. 7. Schematic illustration of the fabrication procedure for the microlens structure with Al₂O₃ nanoparticles^[69].

微透镜结构转印到聚萘二甲酸乙二醇酯 (polyethylene naphthalate, PEN) 基底背面, 不仅能够提高 OLED 器件的效率和稳定性, 而且可以最大限度地减少不同视角下的发射光谱变化. 苏州大学的唐建新教授课题组 [70] 通过软纳米压印技术在柔性基底表面压印非周期纳米透镜结构作为光耦合输出层, 白光 OLED 器件的最大功率效率达到 52 lm/W, 并在不同视角下具有良好的颜色稳定性.

随机微纳透镜结构能够有效耦合输出基底模式所限制的光, 作为外部光耦合输出结构, 它的制备工艺简单, 可以独立制作, 最后将其与器件简单结合即可, 不影响器件的电学性质. 另外, 制备好的光耦合输出结构模板可进行多次转印, 重复利用, 成本较低, 因此可广泛应用于显示和照明器件.

4.1.2 光散射介质层

将散射介质结合到器件基底表面, 利用介质材料对光的散射改变光线的传播方向, 从而减少基底/空气界面光线的全反射, 可有效抑制基底模式光损失.

苏州大学廖良生教授课题组 [56] 通过在器件基底表面旋涂掺杂 TiO₂ 纳米粒子的溶胶-凝胶形成光散射层, 有效俘获限制在玻璃基底中的光, 电流效率有 65% 的增强. 由于 TiO₂ 纳米粒子的各向同性散射效应, 能够有效地抑制光学微腔效应, 重新分布从玻璃基底出射的光, 使得在不同的观测角度下发光强度能够均匀增强, 归一化的亮度分布接近于朗伯发射. 此技术简便且成本低, 适合于大面积的 OLED 照明器件应用. 此外, 在柔性 OLED 中也可以利用随机分散的光散射纳米粒子来增强器件的光耦合输出, 例如 Liu 等 [71] 将 SiO₂ 纳米粒子均匀分散在光刻胶 SU-8 中, 将其刮涂在 PEN 基底表面作为散射层, 白光 OLED 器件的最大功率效率可达 101.3 lm/W, 同时器件寿命也有所改善, 并且展现了优异的颜色稳定性. 图 8 为器件的光线传播示意图, 可以看出由于基底与空气的折射率不匹配, 一部分的光被限制在器件内部, 通过在基底表面刮涂嵌入 SiO₂ 纳米粒子的散射层来调控光线的传播路径, 部分限制的光被耦合输出到空气中, 提高了光耦合输出效率. Ding 等 [72] 将 SiO₂ 纳米粒子以一定的掺杂比例嵌入聚氨酯丙烯酸酯 (polyurethane acrylate, PUA) UV 固化胶中, 将其旋涂在柔性聚对苯二甲酸乙二醇

酯 (polyethylene terephthalate, PET) 基底上作为耦合输出薄膜, 成功应用在 150 mm × 150 mm 的大面积绿光柔性 OLED 器件中, 由于纳米粒子的散射作用, 发光强度有一倍的增强, 并且在不同的观测角度下无明显的光谱失真. Kim 和 Park [73] 通过溶液法将高折射率的 TiO₂ 纳米粒子嵌入到基底与 ITO 电极之间, 将折射率低的 SiO₂ 纳米粒子分布在基底/空气界面, 有效改善了基底/ITO 电极和空气/玻璃界面的折射率失配问题, 电流效率提高了 59.3%, 且色坐标十分稳定. Schaefer 等 [74] 通过溶液法将 TiO₂ 纳米粒子散射层直接沉积在小分子 OLED 的顶部, 顶发射 OLED 器件的外量子效率从 4.7% 提高到 7.4%, 并且不影响其电学特性, 散射层极大地减少了光谱依赖性, 增强了色坐标的稳定性.

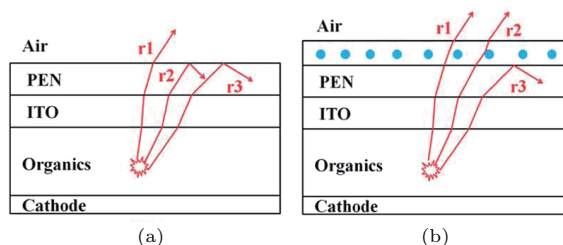


图 8 器件的光线传播示意图 (a) 无散射层; (b) 有散射层 [71]

Fig. 8. Schematic diagram of ray propagation of the device: (a) Without a scattering layer; (b) with a scattering layer [71].

在器件外表面结合散射介质层是一种简单高效的光耦合输出方法, 非常适合白光照明器件. 通过采用溶液法或加入表面活性剂可以有效减少纳米粒子的聚集, 制作成本低, 因此在大面积照明器件有很大的应用前景.

4.1.3 聚合物多孔散射薄膜

图 9 为聚合物多孔散射薄膜的光耦合输出原理图 [75], 对于常规底发射 OLED 器件, 当光线入射角大于临界角时, 在玻璃/空气界面处会发生全反射 (光线 2), 导致部分光线被限制在器件内部. 然而, 当在基底表面附着聚合物多孔薄膜后, 在薄膜内存在许多孔隙, 由于薄膜与孔隙的折射率不同, 光线在进入散射薄膜后会穿过这些孔隙, 经过多次光散射后改变光线的传播方向 (光线 3), 使更多的光线逸出到空气中, 从而增强器件的光耦合输出.

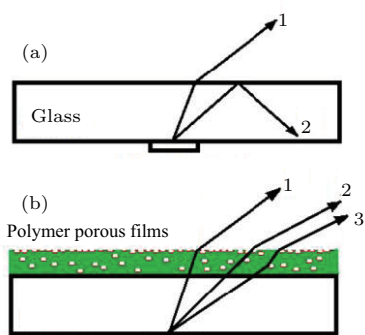


图9 多孔薄膜光线传播示意图 (a) 无聚合物; (b) 有聚合物 [75]

Fig. 9. Schematic diagram of ray propagation: (a) Without polymer porous films; (b) with polymer porous films [75].

Go 等 [76] 将聚酰亚胺前驱体通过沉浸式沉淀法制备了多孔光散射层, OLED 器件的外量子效率达到了 30.8%, 并且提高了各个角度的出光均匀性。

另外, 他们进行了光学模拟, 结果表明通过优化孔径的大小、形状和密度, 可以获得更高的光耦合输出效率. Pyo 等 [77] 为了改善微腔器件的视角依赖性, 在一定湿度条件下旋涂醋酸丁酸纤维素制备了纳米多孔聚合物薄膜 [78], 以此作为散射介质结合到柔性 PET 基底, 有效提高了器件效率, 并且抑制了光谱失真. 此外, 纳米多孔聚合物薄膜没有引起像素模糊效应, 适用于显示器件应用. Lee 等 [79] 采用无色聚酰亚胺通过浸渍沉淀原理获得了微孔聚酰亚胺散射膜, 将此薄膜结合到嵌入无色聚酰亚胺中 AgNW 电极的背面, 实现了外耦合增强, 其制备过程如图 10 所示. 通过将聚酰亚胺用作基底和散射膜, 可以最大限度地减少器件的光损失, 白光 OLED 器件的外量子效率提高了 74%. 此外, 在不同视角下的颜色均匀性得到改善, 这对于照明应用来说非常重要。

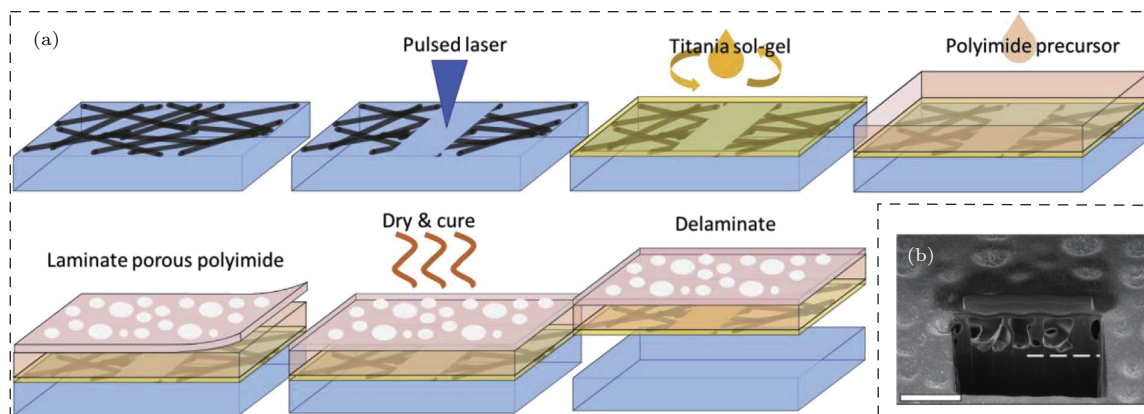


图 10 多孔散射薄膜的制备过程及其扫描电镜图 (a) 制备过程示意图; (b) 扫描电镜图 [79]

Fig. 10. The fabrication procedure and scanning electron microscope image of porous scattering film: (a) Schematic diagram for the fabrication procedure; (b) scanning electron microscope image [79].

4.1.4 基底表面粗化

基底表面粗糙化是提高器件光耦合输出效率的一种较为简单的方法, 其原理如图 11 所示 [80],

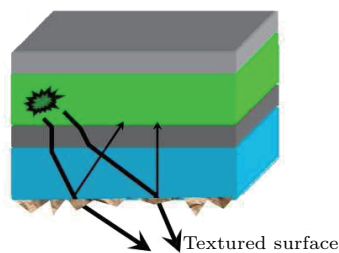


图 11 具有粗糙基底的 OLED 器件光耦合输出示意图 [80]

Fig. 11. Schematic diagram for light out-coupling of device with a coarsening substrate [80].

粗糙界面会改变基底与空气间的全反射角, 增强光散射并增加出光面积, 使更多的光线出射到空气中, 提高光耦合输出效率。

Kwok 和 Chen [81] 通过对玻璃基板的边缘和背面进行简单的喷砂处理来粗糙化基板, 从而散射光线, 器件的光耦合输出效率提高了 20%. 而且由于散射效应, 器件在所有视角范围内颜色稳定且亮度分布均匀, 接近于朗伯发射, 这种简单而经济的方法适用于大面积 OLED 器件的制备. 采用同样的处理方法, Zhou 等 [82] 对 OLED 器件基底进行粗化处理, 如图 12 所示, 粗糙表面将改变光线在基底/空气界面处的入射角, 使更多的光线出射到空气中, 白光器件的最大亮度提高了 42.5%,

外量子效率提高了28.9%。通过调控基底表面的粗糙度,发现粗糙度在1—3 μm时,外量子效率与表面粗糙度呈线性关系。Lee等^[83]通过O₂等离子体处理PET基底表面,粗糙化的PET基底使更

多的光耦合输出到空气中,器件亮度提高了70%,另外漫透射率由处理前的1.35%提升到85%,说明粗化后的基底散射增强,有效减少了基底模式光损失。

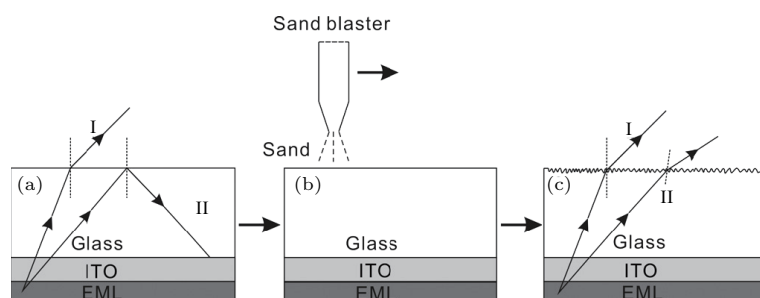


图12 基底粗化处理过程及 OLED 器件光线传播示意图 (a) 表面平整基底 OLED 器件的光线传播示意图; (b) 喷砂过程示意图; (c) 表面粗糙基底 OLED 器件的光线传播示意图^[82]

Fig. 12. Dealing process of rough surface substrate and the propagation of lights from an OLED device: (a) Schematics of the propagation of lights from an OLED device with smooth surface substrate; (b) sand-blasting process; (c) the propagation of lights from an OLED device with rough surface substrate^[82].

4.2 抑制波导模式光损失

增强器件光耦合输出效率的关键之一在于如何有效提取波导模式所限制的光,常用的方法包括在器件内部插入散射介质层以及随机凹凸波纹结构等。

4.2.1 插入散射介质层

将纳米粒子嵌入到器件内部,通过散射原理改变了内部光线传播的方向,有效地抑制了波导模式光损失,耦合输出限制在器件内部的光。

Riedel等^[84]将直径为20—30 nm的SiO₂纳米粒子与PEDOT:PSS以不同的比例混合,旋涂在玻璃表面作为复合的有机/无机空穴传输层,相应的电导率可以通过SiO₂的掺杂量来调节,当SiO₂的相对固体体积为84%时,器件的电流效率有66%的提高。Park等^[85]将TiO₂纳米粒子与PEDOT:PSS相结合代替传统的ITO作为透明电极,同时也可以作为散射层,用于有机光电器件中。SiN_x因其折射率($n \approx 1.9$)大于ITO ($n \approx 1.8$),所以通常被用作纳米散射层中的介质材料。Liang等^[86]通过SiO₂回填SiN_x纳米材料,形成纳米散射层,其结构示意图如图13所示。将此结构嵌入到玻璃基底与ITO电极之间,作为内部散射层用于OLED器件中,比较了周期性、非周期性和随机性的内部纳米散射层所获得的耦合输出效率,通过研究发现采用随机的

内部散射层的效果最好,并且可以保持器件的宽视角,亮度分布接近于朗伯发射,其内部散射层适用于显示器件。Change等^[87]将混有TiO₂纳米粒子的透明光刻胶嵌入到ITO电极与玻璃基底之间,形成内部散射层,磷光OLED器件的功率效率提高了4.3倍。随后,该课题组通过调节折射率形成了梯度折射率基底,将TiO₂纳米粒子混合光刻胶嵌入到ITO电极与玻璃基底之间形成内部光耦合输出结构,将SiO₂纳米粒子混合PDMS旋涂在玻璃基底背部形成外部散射层,用来减少波导模式及基底模式造成的光损失,效率提升了1.6倍^[88]。Chang等^[89]通过物理振动使TiO₂纳米粒子与ZrO₂研磨颗粒均匀分散在聚合物基质中,旋涂在玻璃基底上加热固化,在此基础上得到白光OLED器件的发光效率达到46 lm/W,外量子效率达到33%。另外,对不同视角下器件颜色稳定性有显著的改善,并获得了近乎完美的朗伯发射特性。

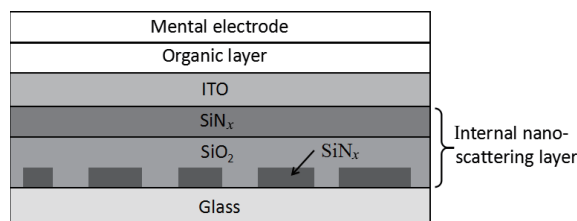


图13 嵌入随机内部散射层的 OLED 器件结构图^[86]

Fig. 13. Device structure of OLED with an embedded random internal scattering layer^[86].

Joo 等^[90]使用随机分布的 Ag 纳米粒子作为模板, 通过刻蚀得到了随机纳米散射层, 将其引入到 ITO 电极与玻璃之间, 制备了白光透明 OLED 器件, 总效率提升了 101%. Lee 等^[91]提出一个简便的方法, 通过融化 Ag 纳米线形成离散的 Ag 纳米点, 结合刻蚀工艺, 制备了一个随机的光散射层作为内部光耦合输出结构, 用于 Ag 纳米点 OLED 器件的光耦合输出, 器件外量子效率增强了 49.1%. 在此基础上使用自发形成的皱纹结构作为外部提取层, 进一步提取被限制在基底模式的光, 其外量子效率最大为 65.3%, 器件在宽视角下的发射光谱变化可以忽略不计. 由于纳米粒子分布的随机性, 散射光不是集中在一个特定的方向上, 而是在所有方向上均匀分布. 如图 14 所示, Song 等^[61]通过对真空沉积的 Ag 薄膜进行热退火, 形成自聚集的 Ag 纳米粒子, 耦合输出波导模式所限制的光, 器件的外量子效率有 11% 的提高, 同时可以有效抑制 OLED 微腔结构严重的角度依赖性.

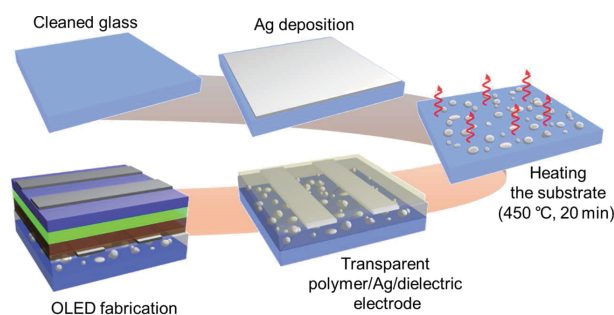


图 14 具有自聚集 Ag 纳米粒子器件的制备过程示意图^[61]

Fig. 14. Schematic diagram of the fabrication process for device with self-aggregating Ag nanoparticles^[61].

4.2.2 随机凹凸波纹结构

Jin 等^[92]通过简单的溶液法将 SiO₂ 纳米粒子嵌入空穴传输层中, 通过旋涂的方式形成较为平滑的波纹表面, 减少了器件中有机层和透明电极界面处的全内反射, 同时可以避免有机层的损坏及透明电极的电学和光学性能的劣化, 显著提高了光耦合输出效率, 并且无角度依赖性. 如图 15 所示, Yuan 等^[93]通过在 PEDOT 层上旋涂不同直径的 Al₂O₃ 纳米粒子的乙醇溶液制备了自发分布的波纹结构, 能够有效提取波导模式、基底模式和界面等离子体模式所限制的光, 在宽视角下无光谱失真, 同时抑制了效率滚降, 最大外量子效率达到了 20.9%. 器件性能的增强主要归因于光耦合输出能力及电荷

载流子复合能力的提高, 此种方法成本低、操作简单. To 等^[94]基于 CsCl 盐在空气中的潮解自组装过程, 形成随机分布的岛状或网状结构, 能够减少波导模式造成的光损失, 电流效率和功率效率分别有 1.83 和 1.65 倍的提升. Shi 等^[95]报道了基于 SiO₂ 纳米小球为掩模板刻蚀纳米结构的双面图案化的 OLED 器件制备方法, 器件的光耦合输出效率提高了 2.5 倍以上, 并且没有造成光谱失真以及视角依赖性.

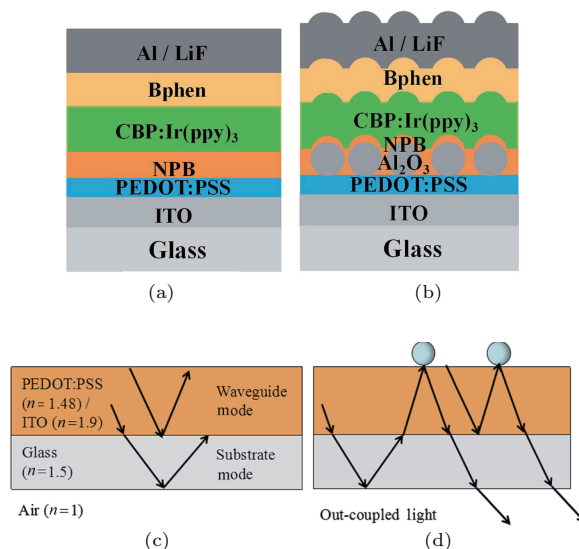


图 15 平面 OLED 器件和嵌入纳米粒子 OLED 器件的结构和光线传播过程 (a) 平面 OLED 器件的结构图; (b) 嵌入纳米粒子 OLED 器件的结构图; (c) 平面 OLED 器件的光线传播过程示意图; (d) 嵌入纳米粒子 OLED 器件的光线传播过程示意图^[93]

Fig. 15. The structure and process of ray propagation of the planar OLED device and with embedded nanoparticles: (a) The schematic diagrams of the planar OLED device structure; (b) the OLED device structure with embedded nanoparticles; (c) process of ray propagation with planar structure; (d) process of ray propagation with embedded nanoparticles^[93].

唐建新教授课题组^[52,96,97]对使用软纳米压印技术图案化器件层有着深入详细的研究. 2015 年, 他们通过在柔性 ITO/PET 基底上旋涂 PEDOT:PSS, 利用软纳米压印光刻技术制备了一维、二维和模拟蛾眼结构的准随机纳米结构, 制备过程如图 16 所示. 纳米结构增强了波导光的耦合输出且具有优异的光学性能, 准随机纳米结构相比于周期性光栅结构的器件效率明显提高, 其外量子效率和电流效率分别提高了 1.51 倍和 1.43 倍. 由于非周期纳米结构方向的随机性, 无光谱失真, 同时在可见光范围内颜色稳定性好, 可实现大范

围的视角变化^[96]. 2016年, 该课题组首先在柔性PET基底上旋涂一层UV固化树脂层(D10), 通过模板进行软纳米压印形成随机纳米结构, 随后蒸镀超薄金属/电介质复合电极(MoO₃/Ca:Ag/MoO₃), 不仅可以提高导电能力, 而且可以最小化波导模式光损失, 实现高效率的无ITO电极的柔性器件. 由此制备的绿光柔性OLED器件最大外量子效率可达43.7%, 此种纳米复合电极适用于制造大面积柔性光电子器件^[97]. 2017年, 他们使用PDMS模具进行软纳米压印, 将非周期性的纳米锥型阵列转印到ITO-玻璃基板两侧的ZnO层上, 制备了一个高效的倒置白光OLED, 抑制波导模式和基底模式光损失, 其外量子效率达到了42.4%, 功率效率达到了85.4 lm/W, 并且随着视角的增加, 发射光谱不存在失真或移动, 发光颜色稳定^[52].

Cho等^[98]通过旋涂的方法将液体预聚物沉积在基板上, 随后进行UV处理形成坚硬的表层, 由于硬皮与软基之间的硬度差异, 导致褶皱自发形成. 利用此皱纹结构作为OLED器件的内部散射层, 随后使用高折射率的纳米复合材料(ZrO₂)作为平坦层, 使表面粗糙度和雾度同时降低, 用来提取波导模式限制的光, OLED器件的外量子效率达到了24.2%. 另外, 在基板的外表面上附加微透镜阵列或半透镜结构, 其外量子效率分别有1.56倍和2.14倍的提高. 由于皱纹分布的随机性, 能够有效地提取所有方向的光线, 消除宽视角下的光谱依赖性, 提升发光均匀性. 由于其工艺简便、尺寸可控, 所提出的皱纹结构可以在大面积上实现, 在光学应用方面开辟了新的途径. Kim课题组通过PS和聚甲基丙烯酸甲酯(Poly (methyl methacrylate), PMMA)的相分离得到了随机分散的纳米孔阵列,

通过UV固化树脂转印得到非周期的纳米柱阵列. 将其引入到IZO电极与玻璃基底之间作为光耦合输出层, 同时改善平整度, 抑制波导模式光损失, 外量子效率提高了24%, 并且不改变发射光谱和朗伯发射特性^[99]. 随后, 该课题组通过控制共混聚合物的组成和溶剂来控制图案的形状、大小和分布, 可直接得到纳米柱阵列作为光耦合输出层(图17),

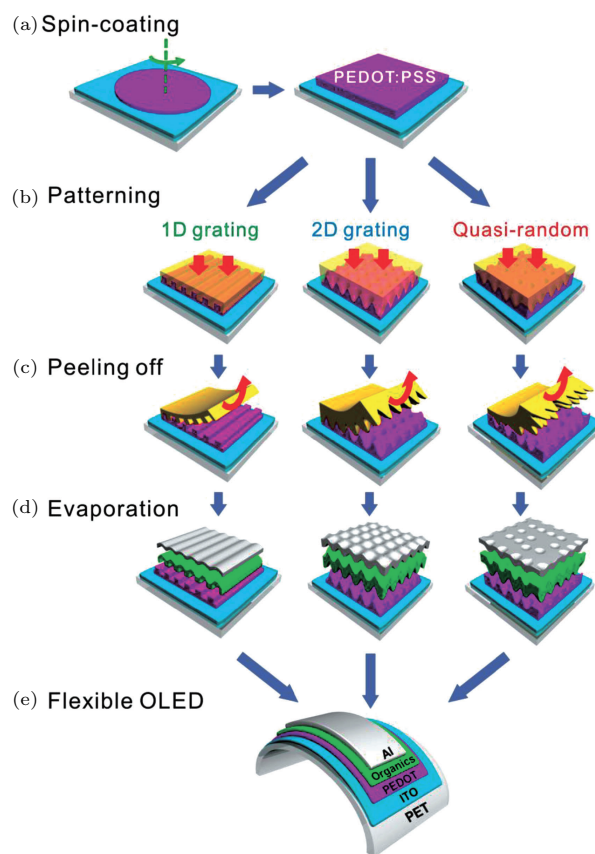


图16 具有一维、二维、随机纳米结构的器件制备过程示意图^[96]

Fig. 16. Schematic diagram of the fabrication process of OLEDs with 1D grating, 2D grating and random nanostructure^[96].

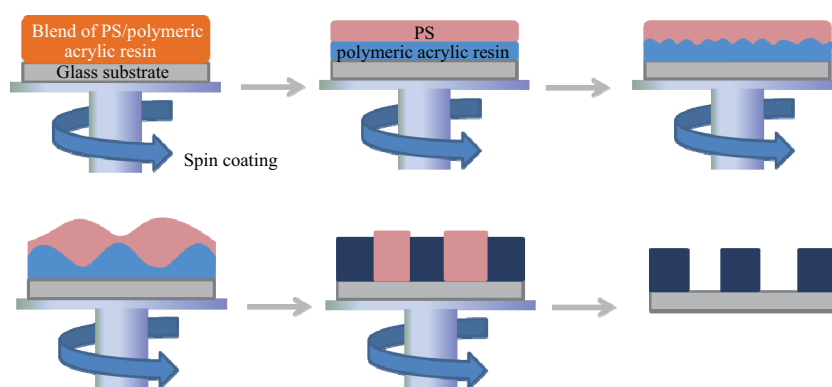


图17 纳米柱阵列的制备过程示意图^[63]

Fig. 17. Schematic illustration of the fabrication process for nano-pillar array^[63].

绿光 OLED 器件的光耦合输出效率提高了 30%，同时可以抑制角度依赖性^[63]。通过纳米压印或光刻等制备随机凹凸波纹结构的方法工艺复杂、成本高，难以用于大面积显示器或大规模生产。而利用聚合物相分离形成随机分散的纳米孔或纳米柱阵列的方法工艺简单、成本低，不仅可以有效抑制波导模式光损失，而且可以避免造成像素模糊，此种光耦合输出技术适用于显示器件，也适用于大面积及柔性器件。

由于内部光耦合输出层的表面是凹凸不平或波浪形的，能够有效抑制光在波导模式下的横向传播，所以此类型的光耦合输出层被广泛用于抑制波导模式光损失。

4.3 表面等离子体激元

表面等离子体激元是沿着电介质和金属界面传播的电磁波，其电磁场呈指数衰减到周围介质中。由于表面等离子体激元模式的波矢量大于真空中相同频率光子的波矢量，因此表面上的等离子体激元模式是无辐射的，其能量在金属层中作为热量消散。由有机层和金属电极组成的 OLED 器件不可避免伴随着表面等离子体激元模式，其功率损耗显著降低了器件效率^[20,100,101]。许多研究通过在 OLED 器件中引入一维或者二维布拉格光栅结构来重新利用表面等离子体，这些光栅可以被复制到任何一层，比如 ITO 阳极、有机层或聚合物层，还可以引入到光刻胶上，然后在图案化基底上制备 OLED 器件^[102,103]。此种方法虽然增强了光的耦合输出效率，但其周期性会导致严重的角度依赖性。目前多采用非周期的图案化电极来抑制界面等离子体损失。

Jiao 等^[104] 基于 PS 与 PMMA 的相分离过程形成随机的凹凸结构，制备了底发射 OLED 器件，如图 18 所示，器件的外量子效率提高了 41%，在不同视角下亮度分布均匀，接近于朗伯发射。这主要归因于波纹状微腔非周期特性的散射作用，能够有效减少有机/金属界面的等离子体模式和 ITO/有机层界面的波导模式所造成的光损失，从而提高光耦合输出。Kim 等^[105] 通过在 ITO 电极上旋涂 SiO₂ 纳米粒子溶液形成随机分布的凹凸纳米结构，耦合输出界面等离子体模式和波导模式所限制的光，不仅降低了器件的驱动电压，而且通过增强耦合输出效率获得了更高的外量子效率。另外，由于

随机凹凸波纹的非周期性，纳米结构的 OLED 器件无角度依赖性。2016 年，唐建新教授课题组^[106] 通过在柔性 PET 基底上覆盖紫外固化树脂层，利用模板进行纳米压印形成非周期的纳米结构，随后沉积透明电极，可以有效抑制器件的微腔效应和表面等离子体模式光损失，白光 OLED 器件的外量子效率增加到 47.2%，并且可以稳定光谱。2017 年，他们又在玻璃基底上旋涂 ZnO，利用非周期结构的 PDMS 模板进行软纳米压印，并结合透明电极制备了全透明的 OLED 器件，如图 19 所示，可以同时抑制界面等离子体激元模式和波导模式造成的光损失，外量子效率达到了 38.8%。由于非周期纳米结构的随机性和准单向光耦合输出能力，减弱了微腔效应且保证了色坐标的稳定性^[107]，适用于透明显示器和照明应用。

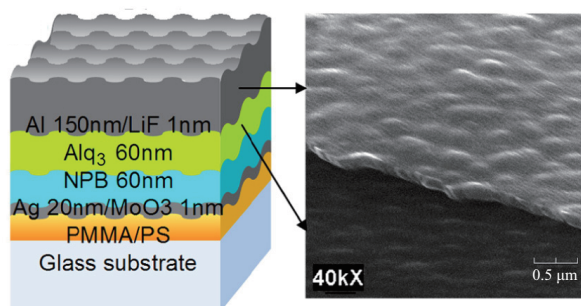


图 18 基于 PMMA-PS 纳米结构的 OLED 器件结构图以及器件顶层 Al 和 Alq₃ 表面的扫描电镜图^[104]

Fig. 18. Device structure of OLED with PMMA-PS nano-structure, and scanning electron microscope image of the Al and Alq₃ layer viewing from the top of this device^[104].

Koo 等^[44] 在热膨胀的 PDMS 上沉积厚度为 10 nm 的铝层，冷却至环境温度后，由于 PDMS 和 Al 的热膨胀系数不同，收缩成随机褶皱。在这种褶皱结构上溅射 ITO 电极，使得器件的电极层与有机层均呈现波纹状，绿光 OLED 器件的电流效率和功率效率分别提升了 1.8 倍和 2.2 倍。后续通过对光调控机制的阐释，证明了此褶皱结构不仅对 OLED 器件的波导模式起作用，更缩减了表面等离子体模式损耗。由于这些非周期弯曲结构方向的随机性，提高了光谱稳定性，适用于制造全色和白色 OLED 器件。Park 和 Jeon^[108] 将薄发光层旋涂在具有 PEDOT:PSS 层的柔性聚醚砜 (polyethersulfone, PES) 基底上，在真空条件下热蒸发金属 Al，在此过程中所产生的热量会到达发光层导致其膨胀，由于发光层 ($\sim 10^{-4}/\text{K}$) 和金属

Al层($\sim 10^{-6}/K$)之间热膨胀系数的巨大差异,冷却后会形成随机分布的弯曲结构,器件制备过程如图20所示,器件的外量子效率达到15%,并且不会造成严重的光谱失真.此方法形成的弯曲

结构可以直接在器件制备过程中制造,不需要使用压印的方法,成本低,操作简单,为制造大面积、高性能的柔性显示器和照明设备提供了坚实的基础.

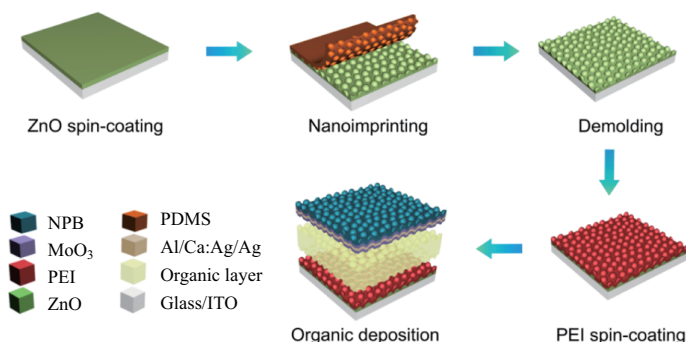


图19 具有非周期纳米结构透明 OLED 器件的制备过程示意图 [107]

Fig. 19. Schematic illustration of the fabrication process for transparent OLEDs with non-period nanostructure [107].

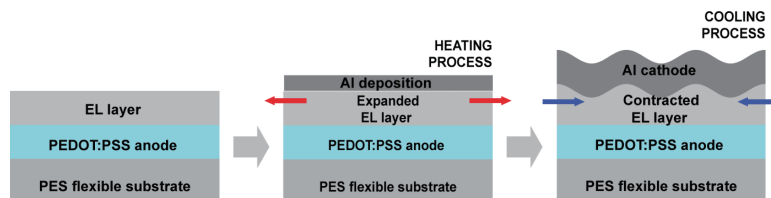


图20 在柔性 PES 基底上制备自发弯曲结构的柔性 OLED 器件过程示意图 [108]

Fig. 20. Schematic diagram of the fabrication process for a buckled flexible OLED on a flexible PES substrate [108].

5 总结与展望

综上所述,采用非周期的微纳结构能够有效增强 OLED 器件的光耦合输出,同时克服周期性微纳结构所造成的角度依赖性问题,在宽视角下亮度分布接近于朗伯发射且光谱稳定.本文首先分析了器件的光损失机理,然后分别从基底模式、波导模式和界面等离子体三种光损失模式出发,详细介绍了目前常用的几种非周期微纳光耦合输出技术.我们认为,今后 OLED 器件光耦合输出的主要研究方向可能主要集中在以下几个方面.

1) 建立理论模型. 目前对于非周期微纳结构增强器件光耦合输出已有了一定的研究进展,以此为依据总结出合理的理论模型,对器件结构的设计加以指导,将有利于非周期微纳光耦合输出技术的发展.

2) 软件模拟仿真. 通过借助一些模拟仿真软件(例如 3D FDTD, TracePro, FDTD solutions 等)建

立光学模型,模拟光耦合输出效果,可为设计者提供有效的分析平台,能够降低风险,减少许多不必要的时间与资源浪费.

3) 采用两种或多种非周期微纳光耦合输出结构,多措并举,取长补短,同时抑制三种模式的光损失,可以进一步提高器件的光耦合输出效率.

4) 现阶段,一些提高光耦合输出的方法会增加器件的雾度,这会导致其在显示应用中的像素模糊,如何在提高器件光耦合输出的同时降低像素模糊度是一个值得探讨的课题.

5) 柔性器件的应用. 柔性器件具有可穿戴、重量轻、易携带及可弯折等优点,可应用于电子报纸及可穿戴显示器等柔性光电器件中. 目前光耦合输出技术在柔性器件中的应用相对较少,若在保证器件稳定性的前提下,集成光耦合输出技术,可进一步增强器件效率,有助于大面积高效柔性器件的发展. 因此,光耦合输出技术在柔性器件中的应用将是未来的一个研究热点.

总之, OLED 发展迅速,通过研究者们对现存

成果的总结和进一步拓展,伴随着新思路、新方法的产生,我们相信光耦合输出结构会不断完善, OLED 器件光耦合输出效率会有大幅度的提升,从而进一步促进整个显示和照明领域的发展。

参考文献

- [1] Tang C W, Vanslyke S A, Chen C H 1989 *J. Appl. Phys.* **65** 3610
- [2] Luo Y, Wang C H, Wang L, Ding Y C, Li L, Wei B, Zhang J H 2014 *ACS Appl. Mat. Interfaces* **6** 10213
- [3] McCarthy M A, Rinzler A G 2011 *Science* **332** 570
- [4] Shen J, Li F, Cao Z, Barat D, Tu G 2017 *ACS Appl. Mat. Interfaces* **9** 14990
- [5] Kessler F, Watanabe Y, Sasabe H, Katagiri H, Nazeeruddin M K, Grätzel M, Kido J 2013 *J. Mater. Chem. C* **1** 1070
- [6] Eom S H, Wrzesniewski E, Xue J G 2011 *J. Photon. Energy* **1** 011002
- [7] Xu L, Tang C W, Rothberg L J 2016 *Org. Electron.* **32** 54
- [8] Han J H, Kim D H, Choi K C 2015 *Opt. Express* **23** 19863
- [9] Zhang X W, Hu Q 2012 *Acta Phys. Sin.* **61** 207802 (in Chinese) [张新稳, 胡琦 2012 物理学报 **61** 207802]
- [10] Kim S Y, Jeong W I, Mayr C, Park Y S, Kim K H, Lee J H, Moon C K, Brütting W, Kim J J 2013 *Adv. Funct. Mater.* **23** 3896
- [11] Uoyama H, Goushi K, Shizu K, Nomura H, Adachi C 2012 *Nature* **492** 234
- [12] Sun Y, Giebink N C, Kanno H, Ma B, Thompson M E, Forrest S R 2006 *Nature* **440** 908
- [13] Wang Q, Ma D 2010 *Chem. Soc. Rev.* **39** 2387
- [14] Hyun W J, Lee H K, Im S H, Park O O 2014 *J. Nanosci. Nanotechnol.* **14** 8411
- [15] Lee J I, Lee J, Lee J W, Cho D H, Shin J W, Han J H, Chu H Y 2012 *ETRI J.* **34** 690
- [16] Adachi C, Kwong R C, Djurovich P, Adamovich V, Baldo M A, Thompson M E, Forrest S R 2001 *Appl. Phys. Lett.* **79** 2082
- [17] Tokito S, Iijima T, Suzuri Y, Kita H, Tsuzuki T, Sato F 2003 *Appl. Phys. Lett.* **83** 569
- [18] Lan L H, Tao H, Li M L, Gao D Y, Zou J H, Xu M, Wang L, Peng J B 2017 *Acta Phys. Chim. Sin.* **33** 1548 (in Chinese) [蓝露华, 陶洪, 李美灵, 高栋雨, 邹建华, 徐苗, 王磊, 彭俊彪 2017 物理化学学报 **33** 1548]
- [19] Saxena K, Jain V K, Mehta D S 2009 *Opt. Mater.* **32** 221
- [20] Hobson P A, Wasey J A E, Sage I, Barnes W L 2002 *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.* **8** 378
- [21] Uoyama H, Goushi K, Shizu K, Nomura H, Adachi C 2012 *Nature* **492** 234
- [22] Chutinan A, Ishihara K, Asano T, Fujita M, Noda S 2005 *Org. Electron.* **6** 3
- [23] Nowy S, Krummacher B C, Frischeisen J, Reinke N A, Brütting W 2008 *J. Appl. Phys.* **104** 801
- [24] Meerheim R, Furno M, Hofmann S, Lussem B, Leo K 2010 *Appl. Phys. Lett.* **97** 275
- [25] Bocksrocker T, Preinfalk J B, Aschetauscher J, Pargner A, Eschenbaum C, Maierflaig F, Lemme U 2012 *Opt. Express* **20** A932
- [26] Möller S, Forrest S R 2002 *J. Appl. Phys.* **91** 3324
- [27] Mann V, Rastogi V 2017 *Opt. Commun.* **387** 202
- [28] Sun Y, Forrest S R 2006 *J. Appl. Phys.* **100** 3730
- [29] Hong K, Lee J L 2011 *Electron. Mater. Lett.* **7** 77
- [30] 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]
- [31] Do Y R, Kim Y C, Song Y W, Lee Y H 2004 *J. Appl. Phys.* **96** 7629
- [32] Ishihara K, Fujita M, Matsubara I, Asano T, Noda S, Ohata H, Hirasawa A, Nakada H, Shimoji N 2007 *Appl. Phys. Lett.* **90** 913
- [33] Lee Y J, Kim S H, Huh J, Kim G H, Lee Y H, Cho S H, Kim Y C, Do Y R 2003 *Appl. Phys. Lett.* **82** 3779
- [34] Bocksrocker T, Preinfalk J B, Asche-Tauscher J, Pargner A, Eschenbaum C, Maier-Flaig F, Lemmer U 2012 *Opt. Express* **20** A932
- [35] Brütting W, Frischeisen J, Schmidt T D, Scholz B J, Mayr C 2013 *Phys. Status Solidi A* **210** 44
- [36] Fuchs C, Schwab T, Roch T, Eckardt S, Lasagni A, Hofmann S, Lussem B, Müllermeskamp L, Leo K, Gather M C 2013 *Opt. Express* **21** 16319
- [37] Jin Y, Feng J, Zhang X L, Bi Y G, Bai Y, Chen L, Lan T, Liu Y F, Chen Q D, Sun H B 2012 *Adv. Mater.* **24** 1187
- [38] Do Y R, Kim Y C, Song Y W, Cho C O, Jeon H, Lee Y J, Kim S H, Lee Y H 2003 *Adv. Mater.* **15** 1214
- [39] Yang J P, Bao Q Y, Xu Z Q, Li Y Q, Tang J X, Shen S 2010 *Appl. Phys. Lett.* **97** 223303
- [40] Gifford D K, Hall D G 2002 *Appl. Phys. Lett.* **81** 4315
- [41] Cho D H, Shin J W, Joo C W, Lee J, Park S K, Moon J, Cho N S, Chu H Y, Lee J I 2014 *Opt. Express* **22** A1507
- [42] Lee K, Lee J, Joo C W, Kim J Y, Cho D H, Lee J I, Chu H Y, Moon J, Ju B K 2014 *ECS Solid State Lett.* **3** R56
- [43] Lee S, Wrzesniewski E, Cao W, Xue J, Douglas E P 2013 *J. Disp. Technol.* **9** 497
- [44] Koo W H, Jeong S M, Araoka F, Ishikawa K, Nishimura S, Toyooka T, Takezoe H 2010 *Nat. Photonics* **4** 222
- [45] Kim J Y, Choi C S, Kim W H, Kim D Y, Kim d H, Choi K C 2013 *Opt. Exp.* **21** 5424
- [46] Zhou L, Ou Q D, Li Y Q, Xiang H Y, Xu L H, Chen J D, Li C, Shen S, Lee S T, Tang J X 2015 *Adv. Funct. Mater.* **25** 2660
- [47] Yamasaki T, Sumioka K, Tsutsui T 2000 *Adv. Funct. Mater.* **76** 1243
- [48] Moller S, Forrest S R 2002 *J. Appl. Phys.* **91** 3324

- [49] Eom S H, Wrzesniewski E, Xue J 2011 *Org. Electron.* **12** 472
- [50] Lee K, Lee J, Kim E, Lee J I, Cho D H, Lim J T, Joo C W, Kim J Y, Yoo S, Ju B K, Moon J 2016 *Nanotechnology* **27** 075202
- [51] Suh M C, Pyo B, Lim B W, Kim N S 2016 *Org. Electron.* **38** 316
- [52] Zhao X D, Li Y Q, Xiang H Y, Zhang Y B, Chen J D, Xu L H, Tang J X 2017 *ACS Appl. Mat. Interfaces* **9** 2767
- [53] Wang R, Xu L H, Li Y Q, Zhou L, Li C, Ou Q D, Chen J D, Shen S, Tang J X 2015 *Adv. Opt. Mater.* **3** 203
- [54] Tsai M A, Yu P C, Chiu C H, Kuo H C, Lu T C, Lin S H 2010 *IEEE Photonic. Tech. L.* **22** 12
- [55] Jeong S M, Ha N Y, Takezoe H, Nishimura S 2008 *J. Appl. Phys.* **103** 506
- [56] Zhou D Y, Shi X B, Gao C H, Cai S D, Jin Y, Liao L S 2014 *Appl. Surf. Sci.* **314** 858
- [57] Hu J, Yu Y, Jiao B, Ning S, Dong H, Hou X, Zhang Z, Wu Z 2016 *Org. Electron.* **31** 234
- [58] Schwab T, Fuchs C, Scholz R, Zakhidov A, Leo K, Gather M C 2014 *Opt. Express* **22** 7524
- [59] Chen S, Zhao Z, Tang B Z, Kwok H S 2012 *Org. Electron.* **13** 1996
- [60] Riedel B, Hauss J, Aichholz M, Gall A, Lemmer U, Gerken M 2010 *Org. Electron.* **11** 1172
- [61] Song H J, Han J, Lee G, Sohn J, Kwon Y, Choi M, Lee C 2018 *Org. Electron.* **52** 230
- [62] Niesen B, Rand B P, van Dorpe P, Cheyons D, Tong L, Dmitriev A, Heremans P 2013 *Adv. Energy Mater.* **3** 145
- [63] Lee C, Han K H, Kim K H, Kim J J 2016 *Opt. Express* **24** A488
- [64] Chen K Y, Chang Y T, Ho Y H, Lin H Y, Lee J H, Wei M K 2010 *Opt. Express* **18** 3238
- [65] Park J M, Gan Z, Leung W Y, Liu R, Ye Z, Constant K, Shinar J, Shinar R, Ho K M 2011 *Opt. Express* **19** A786
- [66] Hwang J H, Park T H, Lee H J, Choi K B, Park Y W, Ju B K 2013 *Opt. Lett.* **38** 4182
- [67] Thomschke M, Reineke S, Lüssem B, Leo K 2012 *Nano Lett.* **12** 424
- [68] Joo C W, Lee K, Lee J, Cho H, Shin J W, Cho N S, Moon J 2017 *J. Lumin.* **187** 433
- [69] Kim Y Y, Park J J, Ye S J, Hyun W J, Im H G, Bae B S, Park O O 2016 *RSC Adv.* **6** 65450
- [70] Xiang H Y, Li Y Q, Zhou L, Xie H J, Li C, Ou Q D, Chen L S, Lee C S, Lee S T, Tang J X 2015 *ACS Nano* **9** 7553
- [71] Liu B, Wang L, Xu M, Tao H, Gao D, Zou J, Lan L, Ning H, Peng J, Cao Y 2014 *J. Mater. Chem. C* **2** 9836
- [72] Ding L, Wang L W, Zhou L, Zhang F H 2016 *Appl. Surf. Sci.* **389** 990
- [73] Kim K H, Park S Y 2016 *Org. Electron.* **36** 103
- [74] Schaefer T, Schwab T, Lenk S, Gather M C 2015 *Appl. Phys. Lett.* **107**
- [75] Liu R, Ye Z, Park J M, Cai M, Chen Y, Ho K M, Shinar R, Shinar J 2011 *Opt. Express* **19** A1272
- [76] Go H, Koh T W, Jung H, Park C Y, Ha T W, Kim E M, Kang M H, Yong H K, Yun C 2017 *Org. Electron.* **47** 117
- [77] Pyo B, Joo C W, Kim H S, Kwon B H, Lee J I, Lee J, Suh M C 2016 *Nanoscale* **8** 8575
- [78] Lim B W, Suh M C 2014 *Nanoscale* **6** 14446
- [79] Lee K M, Fardel R, Zhao L, Arnold C B, Rand B P, Lee K M, Fardel R, Zhao L, Arnold C B, Rand B P 2017 *Org. Electron.* **51** 471
- [80] Jeong S M, Takezoe H 2012 *Effect of Photonic Structures in Organic Light-Emitting Diodes-Light Extraction and Polarization Characteristics* (INTECH Open Access Publisher) pp66–67
- [81] Kwok H S, Chen S 2010 *Opt. Express* **18** 37
- [82] Zhou J, Ai N, Wang L, Zheng H, Luo C, Jiang Z, Yu S, Cao Y, Wang J 2011 *Org. Electron.* **12** 648
- [83] Lee I, Park J Y, Gim S, Ham J, Son J H, Lee J L 2015 *Small* **11** 4480
- [84] Riedel B, Shen Y X, Hauss J, Aichholz M, Tang X C, Lemmer U, Gerken M 2011 *Adv. Mater.* **23** 740
- [85] Park Y, Muller-Meskamp L, Vandewal K, Leo K 2016 *Appl. Phys. Lett.* **108**
- [86] Liang H, Zhu R, Dong Y, Wu S T, Li J, Wang J, Zhou J 2015 *Opt. Express* **23** 12910
- [87] Chang C H, Chang K Y, Lo Y J, Chang S J, Chang H H 2012 *Org. Electron.* **13** 1073
- [88] Chang C H, Chang T F, Liang Y H, Lo Y J, Wu Y J, Chang H H 2016 *Jpn. J. Appl. Phys.* **55**
- [89] Chang H W, Lee J, Hofmann S, Yong H K, Müller-meskamp L, Lüssem B, Wu C C, Leo K, Gather M C 2013 *J. Appl. Phys.* **113** 234
- [90] Joo C W, Shin J W, Moon J, Huh J W, Cho D H, Lee J, Park S K, Cho N S, Han J H, Chu H Y, Lee J I 2016 *Org. Electron.* **29** 72
- [91] Lee K, Shin J W, Park J H, Lee J, Joo C W, Lee J I, Cho D H, Lim J T, Oh M C, Ju B K 2016 *ACS Appl. Mat. Interfaces* **8** 17409
- [92] Jin H K, Han J W, Dong J L, Entifar S A N, Ramadhan Z R, Lim K T, Yong H K 2017 *Org. Electron.* **54** 204
- [93] Yuan S, Hao Y, Miao Y, Sun Q, Li Z, Cui Y, Wang H, Xu B 2017 *RSC Adv.* **7** 43987
- [94] To B D, Yu C C, Ho J R, Kan H C, Hsu C C 2018 *Org. Electron.* **53** 160
- [95] Shi J, Wang L, Li L, Luo Y, Ding Y 2013 *Opt. Lett.* **38** 2394
- [96] Wang R, Xu L H, Li Y Q, Zhou L, Li C, Ou Q D, Chen J D, Shen S, Tang J X 2015 *Adv. Opt. Mater.* **3** 203
- [97] Ou Q D, Xu L H, Zhang W Y, Li Y Q, Zhang Y B, Zhao X D, Chen J D, Tang J X 2016 *Opt. Express* **24** A674
- [98] Cho H, Kim E, Moon J, Joo C W, Kim E, Park S K, Lee J, Yu B G, Lee J I, Yoo S 2017 *Org. Electron.* **46** 139
- [99] Lee C, Kim J J 2013 *Small* **9** 3858
- [100] Hobson P A, Wedge S, Wasey J A E, Sage I, Barnes W L 2002 *Adv. Mater.* **14** 1393

- [101] Koo W H, Jeong S M, Nishimura S, Araoka F, Ishikawa K, Toyooka T, Takezoe H 2011 *Adv. Mater.* **23** 1003
- [102] Bai Y, Feng J, Liu Y F, Song J F, Simonen J, Jin Y, Chen Q D, Zi J, Sun H B 2011 *Org. Electron.* **12** 1927
- [103] Jin Y, Feng J, Zhang X L, Bi Y G, Bai Y, Chen L, Lan T, Liu Y F, Chen Q D, Sun H B 2012 *Adv. Mater.* **24** 1187
- [104] Jiao B, Yu Y, Dai Y, Hou X, Wu Z 2015 *Opt. Express* **23** 4055
- [105] Kim D H, Kim J Y, Kim D Y, Han J H, Choi K C 2014 *Org. Electron.* **15** 3183
- [106] Xu L H, Ou Q D, Li Y Q, Zhang Y B, Zhao X D, Xiang H Y, Chen J D, Zhou L, Lee S T, Tang J X 2016 *ACS Nano* **10** 1625
- [107] Zhang Y B, Ou Q D, Li Y Q, Chen J D, Zhao X D, Wei J, Xie Z Z, Tang J X 2017 *Opt. Express* **25** 15662
- [108] Park B, Jeon H G 2011 *Opt. Express* **19** A1117

REVIEW

Research progress of light out-coupling in organic light-emitting diodes with non-period micro/nanostructures*

Liu Meng-Jiao Zhang Xin-Wen[†] Wang Jiong Qin Ya-Bo Chen Yue-Hua Huang Wei

(National Key Laboratory for Organic Electronics and Information Displays, Institute of Advanced Materials, Nanjing University of Posts and Telecommunications, Nanjing 210023, China)

(Received 21 June 2018; revised manuscript received 18 July 2018)

Abstract

Organic light-emitting diodes (OLEDs) possess a number of advantages such as low power consumption, light weight, wide color gamut, high response speed, and high contrast ratio. They have received widespread attention due to their tremendous commercial applications in the fields of full-color flat panel display and solid-state lighting. Although nearly 100% internal quantum efficiency of OLED has been achieved through adopting phosphorescence or thermally activated delayed fluorescence emitters. However, the majority of light generated in an emitting layer is confined within the whole device but does not escape into air due to the induced surface plasmons at the interface between metal and dielectric layers as well as the differences in refractive index between layers of OLED structures including air, glass substrate, transparent electrode as well as organic or inorganic layers. The external quantum efficiency for an OLED with a flat glass substrate is limited to $\sim 20\%$. A low light out-coupling efficiency severely restricts the development and application of OLED. Therefore, enhancing the light out-coupling efficiency of OLED via light extraction technology offers the greatest potential for achieving a substantial increase in the external quantum efficiency of OLED and has been one of the most attractive projects. Up to now, lots of light out-coupling technologies such as micro-lens arrays, photonic crystal, Bragg mirrors and periodic grating have been suggested to enhance the out-coupling efficiency of OLEDs. However, the periodic light out-coupling structures have a limitation that the electroluminescence intensity and spectrum of OLED usually depend on the viewing angle. The angular dependence of the emission characteristic does not hold true for actual display applications due to its deviation from the Lambertian intensity distribution. In this review, we present recent research progress of using non-period micro/nanostructures to improve the light out-coupling efficiency of OLED. In contrast to the emission directionality for OLED using periodic light out-coupling structures, the luminance distribution and spectral stability of OLED based on non-period micro/nanostructures are insensitive to viewing angle. Various light out-coupling techniques such as random micro/nano lens structure, light scattering medium layer, polymer porous scattering films, random concave-convex corrugated structure, and random buckled structure are summarized and discussed. These techniques have the potential applications in displays and solid-state lighting. Finally, summary and prospects regarding to light-coupling techniques of OLEDs are presented.

Keywords: organic light-emitting diodes, light out-coupling, non-period micro/nanostructures

PACS: 78.66.Qn, 78.60.Fi, 78.20.Bh, 42.25.Gy

DOI: 10.7498/aps.67.20181209

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 61774088, 61705112), the National Basic Research Program of China (Grant No. 2014CB648300), the Natural Science Foundation of Jiangsu Province, China (Grant Nos. BK20170913, BK20161519), and the Project Funded by the Priority Academic Program Development of Jiangsu Higher Education Institutions, China (Grant No. YX03001).

[†] Corresponding author. E-mail: iamxwzhang@njupt.edu.cn