

基于相变原理模拟红色顶发射有机电致发光器件的出光性能*

李慧盈¹⁾ 段羽^{2)†}

1) (吉林大学计算机科学与技术学院, 长春 130012)

2) (集成光电子学国家重点联合实验室, 吉林大学电子科学与工程学院, 长春 130012)

(2011年1月27日收到; 2011年3月9日收到修改稿)

研究了有机发光器件 (organic light emitting diodes, 简记为 OLED) 半透明电极上形成的反射相移对 OLED 光谱产生调制现象. 以红色微腔结构顶发射 OLED (top emitting OLED, TOLED) 为例, 基于微腔理论和传输矩阵理论建立物理模型, 采用计算机数值模拟方法, 得出结果表明器件发光光谱的调制作用不只局限于有机层厚度, 也和反射相移有关. 通过改变覆盖到顶电极表面的有机层厚度的简单方法, 可以实现对顶电极反射相移的调节, 从而改变 TOLED 光学性能. 这一结果为进一步改善器件的性能提供了可靠的理论依据.

关键词: 反射相移模拟, 红色微腔, 顶发射有机发光

PACS: 73.61.-r, 75.40.Mg

1. 引言

伴随着对有机电致发光器件 (organic light emitting device, 简记为 OLED) 结构研究的不断深入, 越来越多的新型结构器件因为各种不同的用途受到人们的重视^[1-5]. 顶发射 OLED 器件 (top emitting OLEDs, 简记为 TOLEDs) 由于避免了像素电路面积同发光面积的竞争的问题, 可以利用相对复杂的有源像素驱动电路来获得更优质的图像, 从而在 OLED 显示屏实用化方面具有潜在的竞争力^[6]. 通过微腔效应可以使具有双金属电极的 TOLED 发出的光谱变窄, 发射光的颜色饱和度也因此明显优于传统底发射器件. 目前, 微腔结构的 TOLEDs 的光学性能研究在实验上已经取得了很大的进展^[7-9], 理论方面的研究也在逐步展开^[10]. 本文通过在半透明电极上增加光学薄膜, 从而改变半透明电极的反射相移来实现对器件出光性能的调制, 即引入相移调整层 (phase shift adjust layer, 简记为 PSAL). 由于多层膜系统的透射率计算比较繁杂, 而近年来出现

的 Matlab 工具, 具有数值计算、矩阵计算、函数图形的生成与处理、控制系统仿真等强大的功能^[11, 12], 因此我们建立模型后用 Matlab 编写了程序, 得到了能准确预测试验结果的数学模型, 为微腔结构的 TOLEDs 的光学研究提供了一种新的研究方法.

2. 模型

在 TOLED 器件中, 衬底或底端的电极为高反射镜面, 光从顶端取出, 顶端电极为透明铟锡氧化物或半透明金属电极. 平板微腔是由两个平行镜面构成法布里-珀罗谐振器, 根据微腔的谐振条件, 可确定谐振波长

$$\sum_i \frac{4\pi d_i n_i(\lambda)}{\lambda} - \varphi_{\text{top}}(0, \lambda) - \varphi_{\text{bot}}(0, \lambda) = 2m\pi, \quad (1)$$

其中 λ 是发射波长, $\varphi_{\text{bot}}(0, \lambda)$, $\varphi_{\text{top}}(0, \lambda)$ 分别为光在底端反射镜和顶端半反射镜之间法线方向上的反射相移, m 是一个不小于 0 的整数, 在这里称为腔的模数. $n_i(\lambda)$, d_i 分别为各个有机层的折射率系

* 国家重点基础研究发展计划 (批准号: 2010CB327701)、国家高技术研究发展计划 (批准号: 2011AA03A110)、吉林省科技发展计划 (批准号: 201101034)、高等学校博士学科点专项科研基金 (批准号: 20070183088)、国家自然科学基金 (批准号: 60706018, 60906021, 60977024, 60876032, 60907013, 41001302) 资助的课题.

† 通讯联系人. E-mail: duanyu@jlu.edu.cn

数和光学厚度. 由(1)式可知在固定模值下获得短共振波长需要一个较小的腔长或更大的反射相移. 理论上通过改变两个反射镜之间的有机介质厚度可以有效的实现调制谐振波长, 但这种方法在改变器件光学性能的同时会影响器件的电学性能, 在实际的应用中存在很多问题^[13]. 为此, 我们在本工作中尝试采用一种新方法即引入相移调整层, 在不影响器件内部电学性能的前提下, 通过在半透明电极上增加光学薄膜, 从而改变半透明电极的反射相移来实现对器件出光性能的调制.

在光学器件中增加介质薄膜层, 利用薄膜的干涉相消来减少反射光, 其实质就是作为电磁波的光在传播的过程中, 在不同介质的分界面上, 由于边界条件的不同, 改变了其能量的分布. 同样道理, 在顶发射器件的金属阴极表面引入 PSAL 后可以改变光的反射和透射能量的分布. 考虑到顶端为半透明

电极, 我们可以将有机/金属/空气两个界面等效为一个界面来计算, 因此反射相移可以表示为

$$r = \frac{\eta_0 - Y}{\eta_0 + Y} = |r|e^{i\varphi}, \quad (2)$$

这里, η_0 是临近等效薄膜的有机层的有效光导纳, 对于 s 偏振波和 p 偏振波和 η_0 分别等于 $n_i(\lambda)\cos\theta_i$ 和 $n_i(\lambda)/\cos\theta_i$. $n_i(\lambda)$ 是临近顶端反射镜的有机层的折射率, θ_i 有机层的夹角. Y 是多层结构的复数光学导纳, 可以通过传输矩阵来计算^[14]. 当各介质层的光学参数固定后, 等效层的复数导纳定义为 $Y = Y(\theta_i, d) = n_m - ik_m$, 其中, d 代表金属层的厚度, 这样根据等效膜系中的反射系数公式, 我们可以推导出 $\varphi_{\text{top}}(\theta_i, \lambda)$ 在 s 偏振方向和 p 偏振方向上的反射相移, 因此, 基于镜面反射的 s 偏振和 p 偏振光的相移可以用(3)式表达, 它与各层的厚度和折射率有关^[15].

$$\begin{aligned} \varphi^s &= \tan^{-1} \left\{ \frac{2n_i(\lambda)\cos\theta_i [n_m(\lambda)y - k_m(\lambda)x]}{[n_m(\lambda)x + k_m(\lambda)y]^2 - n_i^2(\lambda)\cos^2\theta_i + [n_m(\lambda)y - k_m(\lambda)x]^2} \right\}, \\ \varphi^p &= \tan^{-1} \left\{ \frac{2n_i(\lambda)\cos\theta_i [n_m(\lambda)y + k_m(\lambda)x]}{n_i^2(\lambda)(x^2 + y^2) - [n_m^2(\lambda) + k_m^2(\lambda)]^2\cos^2\theta_i} \right\}, \end{aligned} \quad (3)$$

其中 φ^s 和 φ^p 分别表示 s 偏振光和 p 偏振光, θ_{k+1} 是第 $k+1$ 层的夹角, 根据斯涅耳定律与 θ_i 有关, $\cos\theta_i = x + yi$. 在垂直入射情况下, s 偏振光相移即于与

p 偏振光相移相等. 因此, 根据多层薄膜结构的偶极辐射模型, 在垂直入射方向上的发射强度可表示为^[16]

$$I(\lambda) = \frac{T_{\text{top}} \left[1 + R_{\text{bot}} + 2\sqrt{R_{\text{bot}}} \cos\left(\frac{4\pi z}{\lambda} - \varphi_{\text{bot}}\right) \right]}{1 + R_{\text{bot}}R_{\text{top}} - 2\sqrt{R_{\text{bot}}R_{\text{top}}} \cos\left(\frac{4\pi z}{\lambda} - \varphi_{\text{bot}} - \varphi_{\text{top}}(n_r, d_r)\right)} I_0(\lambda), \quad (4)$$

这里 $R_{\text{bot}}, R_{\text{top}}$ 分别为底端反射镜和顶端半反射镜的反射率, z 是偶极子层到底端反射镜的光学距离. 由(4)式可知, 器件的出光性能与两电极之间的有机介质层厚度和反射相移相关, 通过改变反射相移即可以实现对 TOLED 光谱和发光强度的调制.

3. 方法与分析

微腔结构的 TOLED 器件如图 1 所示. 其中 PSAL 由 8-羟基喹啉铝 Alq_3 (Tris (8-hydroxyquinolino) aluminium) 构成; 电子传输层 ETL (emitting transferring layer) 由 BCP (Bathocuproine) 构成; 发光

层 EML 由 Alq_3 掺杂 2% 红光染料 DCJTb (4 (dicyanomethylene) 2-tert-butyl-6 (1, 1, 7, 7-tetramethyljulolidin-4-yl-vinyl) 4H-pyran) 构成; 空穴传输层 HTL 由 NPB (N, N'-diphenyl-N, N'-bis (1-naphthyl) - (1, 1'-biphenyl) -4, 4'-diamine) 构成. 首先, 我们运用传输矩阵理论来确定 TOLED 的各功能层厚参数研究分析半透明电极相移变化, 通过对双金属反射镜的传输特性进行模拟, 研究顶电极金属层 Ag_0 的厚度与偶极子层距离半透明电极之间距离关系 (这里近似为电子传输层的厚度 ETL).

模拟结果如图 2 所示, 从中可以观察到, 微腔发光器件的发光强度明显较非微腔器件增强. 这是微

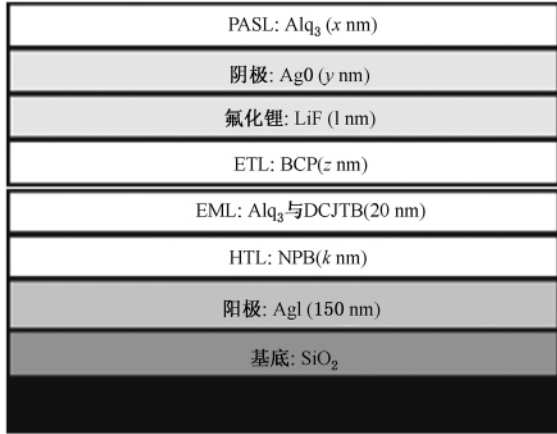


图1 研究中用到的红色微腔 TOLED 器件结构图

腔效应的主要特征. 当半透明电极 y 和电子传输层的厚度 z 分别 23 和 50 nm 时, 红色微腔器件的发光强度得到最大值. 因此, 在下面的研究中固定 Ag_0 层厚度为 23 nm, ETL 层厚度为 50 nm.

本文采用 Alq_3 作为 PSAL, 为了得到 Alq_3 的厚度变化对谐振波长的变化的影响, 首先在垂直的方向上进行反射相移模拟: 半透明阴极 LiF/Ag_0 的反射相移是通过改变 PSAL 层厚度 (0—100 nm) 来实现的, 如图 3 所示, 在 500—750 nm 之间, 反射相移随着波长增加而单调递增; 在 Alq_3 厚度大于 50 nm 时, 当厚度进一步增加, 相变开始下降, 这种现象证明在一定范围内通过改变 PSAL 的厚度可以造成共振波长蓝移, 从而改变器件的出光特性.

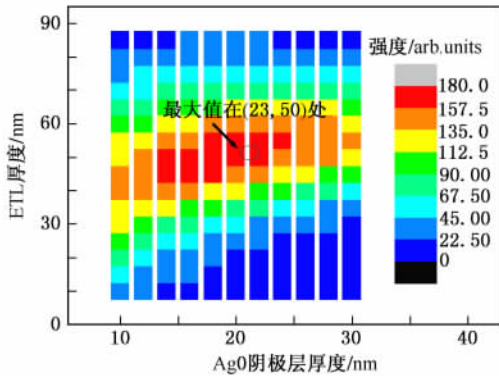


图2 计算机模拟不同 Ag_0 层和 ETL 层厚度对红色微腔 TOLED 器件发光强度的影响

在 (5) 式中, 可以看到光谱移动的范围 $\Delta\lambda$ 实际上受到两个反射电极之间的有机层厚度 (即微腔器件的谐振腔长) 和反射相移 $\Delta\Phi$ 的变化的共同影响.

$$\Delta\lambda = \frac{1}{\Delta\Phi} \left\{ \sum_i 4\pi d_i [n_i(0, \lambda + \Delta\lambda) - n_i(0, \lambda)] - \lambda (\Delta\varphi_{top} + \Delta\varphi_{bot}) \right\},$$

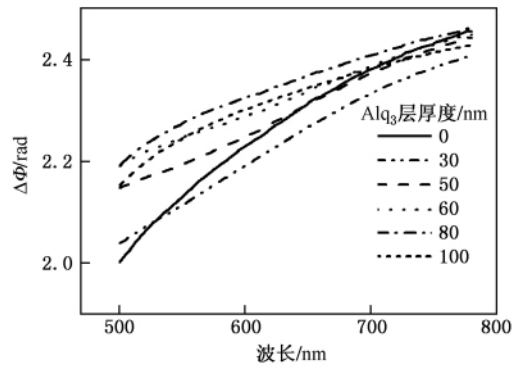


图3 计算机模拟不同厚度 Alq_3 时的顶电极反射相移变化

$$\Delta\Phi = 2m\pi + \varphi_{bot}(0, \lambda + \Delta\lambda) + \varphi_{top}(0, \lambda + \Delta\lambda). \quad (5)$$

对应不同腔长的器件, PSAL 的调制也需要相应调整, 其变化规律如图 4 所示. 通过模拟电极之间有机层厚度 T_{org} ($T_{org} = ETL + EML + HTL$, 由于 ETL 与 EML 的厚度已经确定, 所以改变 HTL 即是改变 T_{org}) 与 PSAL 的厚度变化关系, 我们得到当 HTL 厚度在 45—65 nm 附近存在发光强度极大值点.

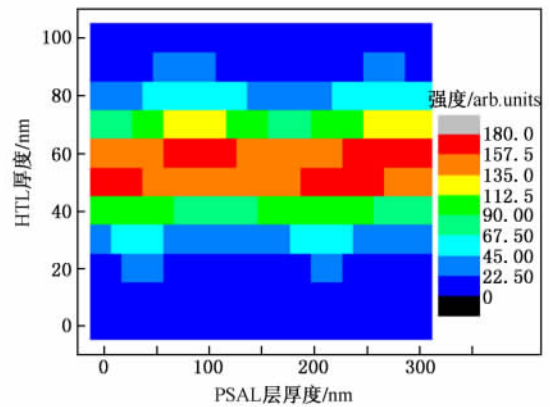


图4 计算机模拟不同 PSAL 层和 HTL 层厚度对红色微腔 TOLED 器件发光强度的影响

通过以上模拟, 可以确定 TOLED 各功能层 Ag_0 , ETL, EML, HTL 厚度分别为 23, 50, 20, 50 nm. 进一步研究覆盖相移调节层后的 TOLED 光学性能变化. 图 5 为不同 PSAL 厚度器件的发光光谱, 从谱图中可以看出, 底发射结构的器件其光谱峰值位于 604 nm, 半峰全宽为 83 nm; 未生长任何相移调节层的器件光谱峰值与其接近位于 606 nm, 半峰全宽为 35 nm; 加入 20 nm PSAL 层的光谱峰值位于 610 nm, 半峰全宽为 35 nm (实验结果与模拟结果近

似);而对于加入 100 nm PASL 层的光谱峰值位于 586 nm,与 0 nm PASL 层器件对比出现近 20 nm 的偏差,这种现象可以解释为当反射镜面的反射率越高,则半峰全宽越窄.

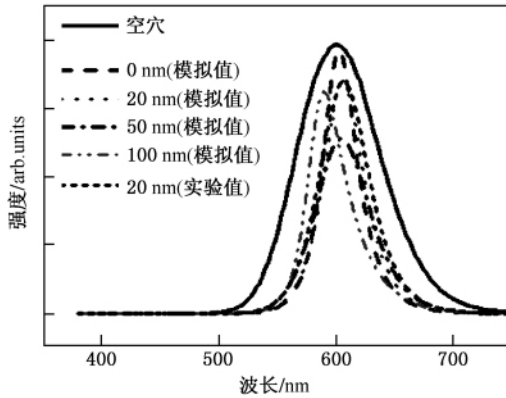


图 5 引入不同厚度 PASL 的顶电极光谱变化特性

图 6 为测试的各个器件顶电极反射率,在 580—610 nm 光波段,反射率随着顶电极覆盖了的 Alq_3 厚度增加而减小,这样,从图 6 中反射率变化的趋势就不难理解当相移调节层厚度增加时,器件光谱的半峰宽有变宽的趋势.

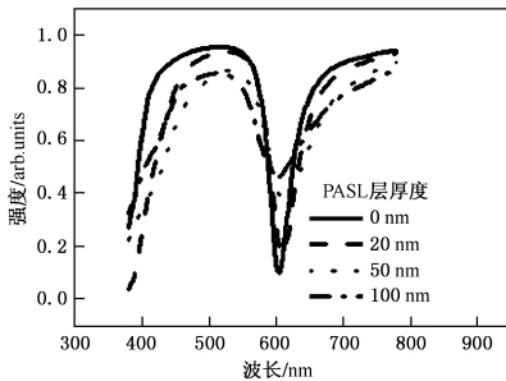


图 6 不同 PASL 厚度时的顶电极反射率变化特性

为了说明模型的准确性,我们利用测量得到不同角度下 TOLED 发光光谱变化与模拟结果相比较的方法.由于角度测量时采用同一器件在相同 $I-V$ 特性下得到测试结果,避免了可能存在的系统偏差.由图 7 可以看到模拟结果与实验的结果两者相差无几,说明建立的模型能够准确预测 TOLED 的各种光学性能.在 $0^\circ-80^\circ$ 范围内,器件光谱发生了近似 60 nm 的蓝移现象.这是不同角度下 s 偏振光和 p 偏振光光谱不再重合造成的,是微腔器件的普遍现象.

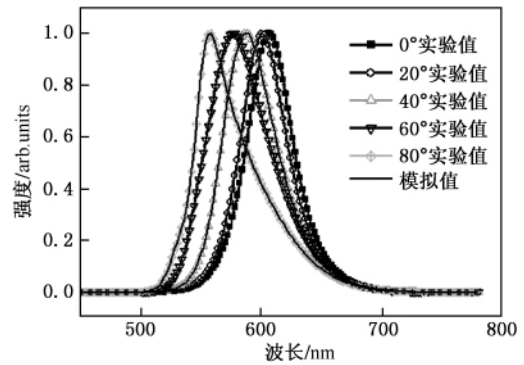


图 7 计算机模拟不同角度时的红色微腔 TOLED 器件发光光谱变化

4. 结 论

使用 PASL 作为光输出耦合层,利用顶发射器件中的微腔效应调节了红色 TOLED 器件的发光特性.通过计算机模拟,理论上证明了 TOLED 发光特性的调节存在于两个方面,一个是有机介质层的厚度,另外一个端面的反射相移.利用相移调节层的概念来设计器件结构,通过在顶电极的表面生长 Alq_3 层,实现对反射相移的调节,从而改变器件光学性能.

[1] Tang C W, Vanslyke A 1987 *Appl. Phys. Lett.* **51** 913
 [2] Wu X M, Hua Y L, Yin S G, Zhang G H, Hui J L, Zhang L J, Wang Y 2008 *Acta Phys Sin.* **57** 1150 (in Chinese) [吴晓明、华玉林、印寿根、张国辉、惠娟利、张丽娟、王宇 2008 物理学报 **57** 1150]
 [3] Kido J, Hongawa K, Okuyama K, Nagai K 1994 *Appl. Phys. Lett.* **64** 815

[4] Dodabalapur A, Rothberg L, Miller T, Kwock E W 1994 *Appl. Phys. Lett.* **64** 2486
 [5] Cao J, Jiang X Y, Zhang Z L 2007 *Acta Phys Sin.* **56** 3493 (in Chinese) [曹进、蒋雪茵、张志林 2007 物理学报 **56** 3493]
 [6] Wu C C, Chen C W, Lin C L, Yang C J 2005 *J. Display Technol.* **01** 248
 [7] Lee C J, Park Y I, Kwon J H, Park J W 2005 *Bull. Korean*

- Chem. Soc.* **26** 1344
- [8] Peng H J, Sun J X, Zhu X L, Yu X M, Wong M, Kwok H S 2006 *Appl. Phys. Lett.* **88** 073517
- [9] Lin C L, Lin H W, Wu C C 2005 *Appl. Phys. Lett.* **87** 021101
- [10] Chen H C, Lee J H, Shiau C C, Kiang Y W, Yang C C, Chang C H 2006 *Proceedings of the Society of Photo-optical Instrumentation Engineers (SPIE)* 6115 W1151
- [11] Wen X, Zhou L, Zhang H 2002 *Basic and Application for Construction of Science Graphics Using MATLAB* (Beijing: Science Press) (in Chinese) [闻新、周露、张鸿 2002 MATLAB 科学图形构建基础与应用 (北京: 科学出版社)]
- [12] Zhu H J, Xiao Y C, Qiu C 2005 *MATLAB Language and Application* (Beijing: Tsinghua University Press) [朱衡君、肖燕彩、邱成 2005 MATLAB 语言及实践教程 (北京: 清华大学出版社)]
- [13] Burin A L, Ratner M A 2000 *J. Phys. Chem. A* **104** 4704
- [14] Mitsas C L, Siapkas D I 1995 *Appl. Opt.* **34** 1678
- [15] Djurišić A B, Rakić A D 2002 *Appl. Opt.* **41** 7650
- [16] Deppe D G, Lei C, Lin C C, Huffaker D L 1994 *J. Mod. Opt.* **41** 325

Simulation of optical performance of red top emitting organic light emitting devices based on phase-shift on reflection theory*

Li Hui-Ying¹⁾ Duan Yu^{2)†}

1) (College of Computer Science and Technology, Jilin University, Changchun 130012, China)

2) (State Key Laboratory on Integrated Optoelectronics, College of Electronic Science and Engineering Jilin University, Changchun 130012, China)

(Received 27 January 2011; revised manuscript received 9 March 2011)

Abstract

In this paper, we study the phase shift of the reflection from a semitransparent electrode of a top-emitting organic light-emitting device (TOLED) which is able to adjust spectrum of TOLED. Based on the micro-cavity theory and the transfer matrix theory, a model is set up to simulate the red TOLED. The simulation results show that the modulation of the device is not only limited to organic layer thickness, but also related to the reflection phase shift. The phase shift of the reflection of top electrode is adjusted through changing the thickness of organic layer capped on the top electrode, thus the TOLED optical performance can be changed. This result provides a useful method of improving the performance of the device.

Keywords: simulation of phase shift of the reflection, red micro-cavity, top emitting organic light-emitting

PACS: 73.61-r, 75.40.Mg

* Project supported by the National Basic Research Program of China (Grant No. 2010CB327701), the National High Technology Research and Development Program of China (Grant No. 2011AA03A110), the Scientific and Technological Developing Scheme of Jilin Province, China (Grant No. 201101034), the Specialized Research Fund for the Doctoral Program of Higher Education of China (Grant No. 20070183088), and the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 60706018, 60906021, 60977024, 60876032, 60907013, 41001302).

† Corresponding author. E-mail: duanyu@jlu.edu.cn