Apr., 2010

文章编号: 1000-7032(2010)02-0171-05

## 利用微球层提高有机发光二极管出光效率

乔小平,袁永波,周 翔\*

(中山大学 光电材料与技术国家重点实验室, 广东 广州 510275)

摘要:采用自组装的方法(提拉法)在普通玻璃盖玻片衬底上制备了聚苯乙烯微球层,对其进行简单的热处理可获得类似微透镜的结构。利用折射率匹配液将其耦合在常规 OLEDs 的出光面,研究了其对器件光学特性的影响。初步的研究结果表明:热处理后的直径为3 μm PS 微球层可将限制在玻璃衬底中的部分光耦合到前向外部空间,并将 OLEDs 器件正方向的发光亮度(效率)提高大约9%。

关键词:有机发光二极管;微球层;出光效率

中图分类号: TN383.1; TN873.3

PACS: 78.60. Fi

PACC: 7860F

文献标识码: A

#### 1 引言

有 机 发 光 二 极 管(Organic light-emitting diodes,简称 OLEDs)是一种新型的平板显示技术和平面光源,具有效率高、响应速度快、宽视角、驱动电压低等诸多优点 $^{[1,2]}$ 。

常规 OLEDs 器件由覆盖透明导电铟锡氧化 物(ITO)薄膜的玻璃衬底、单层或多层(厚度约为 100 nm)有机材料薄膜、高反射率金属背电极构 成,有机材料薄膜的电致发光(EL)穿过 ITO 玻璃 衬底出射到器件的前向外部空间以供利用。由于 有机材料薄膜和 ITO 薄膜的折射率约为 1.8,普 通玻璃衬底的折射率约为1.5,有机材料薄膜的 EL 在 ITO 薄膜和玻璃衬底的界面以及玻璃衬底 和空气的界面处会发生全反射,出射到 OLEDs 器 件前向外部空间的光约占有机材料薄膜 EL 总量 的20%,其余约80%的光主要以导波形式限制在 有机材料薄膜、ITO 薄膜和玻璃衬底中[3]。可见 常规 OLEDs 器件的出光效率较低(约为 20%), 这严重制约了 OLEDs 的发展和应用。如何减少 OLEDs 器件中的全反射效应、提高光耦合到器件 前向外部空间的比例(出光效率)引起人们的广 泛关注[3~11]。

Yamasaki 等<sup>[4]</sup> 利用直径为 550 nm 的单层 SiO<sub>2</sub> 微球(Microsphere, 简称 MS)作为散射层,将

限制在有机材料薄膜、ITO 薄膜和玻璃衬底中的部分光耦合到器件前向外部空间。Moeller等<sup>[6]</sup> 采用微加工方法在ITO 玻璃衬底背面制备了直径为10 μm 的 PDMS 微透镜阵列,将器件外部量子效率提高了50%。Li等<sup>[9]</sup>将SiO<sub>2</sub>微球层热压印在旋涂有PVA 薄膜的ITO 玻璃衬底背面制作了准微透镜阵列,将器件正方向的发光亮度(效率)提高了60%(微球直径400 nm)。

我们采用自组装的方法(提拉法)在普通玻璃盖玻片衬底上制备了聚苯乙烯(Polystyrene,简称 PS,折射率约为 1.59)微球层,对其进行简单的热处理可获得类似微透镜的结构,我们利用折射率匹配液将其耦合在常规 OLEDs 器件的出光面(ITO 玻璃衬底背面),研究其对器件光学特性的影响,初步的研究结果表明:热处理后的直径为 3 μm PS 微球层将器件正方向的发光亮度(效率)提高了大约 9%。

## 2 实 验

实验所用的 PS 微球购自武汉华科微科科技有限责任公司,微球的直径约为 3 μm,折射率约为 1.59。首先将 PS 微球分散在水溶液中形成悬浊液,随后将 PS 微球悬浊液滴于水的表面形成单层 PS 微球层,最后采用提拉法在洁净的普通玻璃盖玻片衬底上(约 1.8 cm×1.8 cm)组装单层 PS

微球层。将盖玻片衬底上的单层 PS 微球层放入真空烘箱(上海博讯实业有限公司, DZF-6020型),在 120  $^{\circ}$  下热处理约 20 min,由室温升至 120  $^{\circ}$  公需 20 min(升温速度约为 5  $^{\circ}$  C/min),而由 120  $^{\circ}$  降至室温约需 200 min(降温速度约为 0.5  $^{\circ}$  C/min),烘箱内的压强约为 0.06 MPa。

实验所用的 ITO(厚度约为 40 nm, 方块电阻约为 50 Ω/□) 玻璃(厚度约为 1.1 mm) 衬底购自深圳南玻公司, ITO 玻璃使用前进行了常规的丙酮、乙醇、去离子水超声清洗。为了提高 ITO 的功函数,对 ITO 玻璃进行了氧等离子体处理。采用真空热蒸镀的方法制备了结构为 ITO/NPB (40 nm)/Alq₃(60 nm)/LiF (1 nm)/Al (100 nm)的 OLEDs 器件,真空腔的压强约为 5×10<sup>-4</sup> Pa。使用 Keithly 236 电源测量单元测量器件的电流电压特性,使用屏幕亮度计(北京师范大学光电仪

器厂,ST-86LA)测量器件的发光亮度。器件光电特性的测量在空气中、室温下进行。

#### 3 结果与讨论

图 1 所示为普通玻璃盖玻片衬底上 PS 微球层的扫描电子显微镜(SEM, JEOL-JFM-6380)照片和相应的形貌示意图。图 1(a) 所示为热处理前 PS 微球层的 SEM 显微照片,可以看出,PS 微球在盖玻片衬底上基本形成单层(monolayer)紧密排列,整体上比较有序,局部区域存在一些空位(其面积小于 5%)。图 1(b) 所示为 120 ℃下热处理约 20 min 后 PS 微球层的 SEM 显微照片,可以看出,热处理后 PS 微球的形状(貌)发生了变化,形成了类似微透镜的结构,可能是热处理温度高于其玻璃转化温度所致,但热处理也可能产生应力,导致 PS 微球层空位面积增加并与衬底剥离。

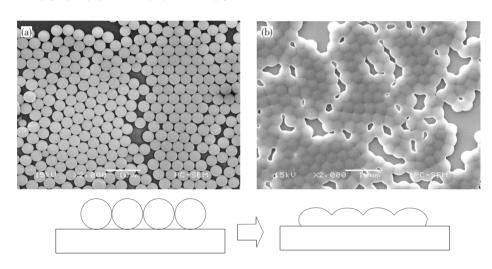


图 1 热处理前(a)、后(b) PS 微球层的 SEM 照片(插图为相应的示意图)

Fig. 1 The SEM images and schematic morphology of the PS MS layer before (a) and after (b) annealing

图 2 所示为附有 PS 微球层的 OLEDs 器件结构,利用折射率匹配液(甘油,折射率约为 1.47) 将其上有热处理后 PS 微球层的盖玻片与 OLEDs 器件出光面(ITO 玻璃衬底背面)光学耦合,用以测量器件的电致发光特性。

图 3(a)和(b)分别是没有 PS 微球层和附有 PS 微球层的器件工作时的照片和示意图,驱动电压都是 3.5 V,亮度约为 10 cd/cm²。玻璃衬底面积约为 1.8 cm×1.8 cm,OLEDs 器件的有效发光面积[由 ITO 阳极和 Al 阴极重叠面积决定,分别对应于图 3(a)和(b)的 Al 和 Bl]约为 0.6 cm×0.6 cm,玻璃衬底表面其它区域分别定义为 A2

和 B2.

由图 3(a) 可以看出,对于常规器件(没有 PS 微球层),当有机材料薄膜的电致发光以大于全

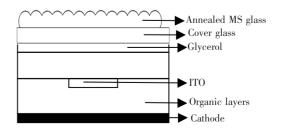


图 2 附有 PS 微球层的 OLEDs 器件结构示意图

Fig. 2 The scheme of OLEDs coupled with MS layer

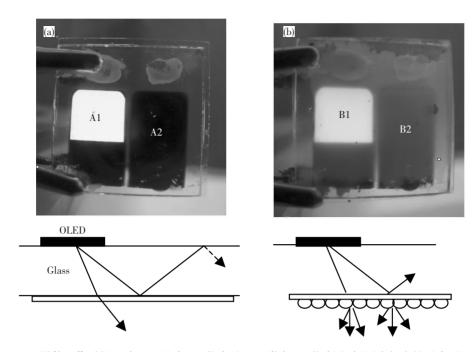


图 3 器件工作时的照片:(a)没有 PS 微球层,(b)附有 PS 微球层(插图为相应的示意图)

Fig. 3 Photographs of the working OLEDs and schematic light propagating in OLEDs without (a), and with (b) the PS MS monolayer

反射临界角出射到玻璃衬底和空气的界面上时,由于全反射作用,会被反射到玻璃衬底中,不能出射到玻璃衬底的前向外部空间(正面),以导波形式限制在玻璃衬底中的这部分光经过多次反射,一部分被吸收,另外一部分从器件的(玻璃衬底)边缘出射,这样,常规器件的电致发光只能出射到有效发光面积 A1 的前向外部空间(正面),玻璃衬底表面其它区域(A2)的前向外部空间(正面)没有光出射。

由图 3(b) 可以看出,对于附有 PS 微球层的器件,当有机材料薄膜的电致发光以大于全反射临界角出射到玻璃衬底和空气的界面上时,由于 PS 微球层的散射作用,部分光可以出射到玻璃衬底的前向外部空间(正面),这样,附有 PS 微球层器件的电致发光不仅能出射到有效发光面积 B1 的前向外部空间(正面),还能出射到玻璃衬底表面其它附有 PS 微球层区域 B2 的前向外部空间(正面),尽管比较微弱。另外,器件有效发光面积 B1 和其它附有 PS 微球层区域 B2 的边界由于散射作用变得模糊,器件有效发光面积看起来增大了。

图 4 所示为器件的电流密度-正向电致发光 (EL)效率特性曲线。从图 4 中可以看出,与常规器件(没有 PS 微球层)相比,附有 PS 微球层器件

的正向发光亮度和效率提高了,例如,在 50 mA/cm²的电流密度时,常规器件(没有 PS 微球层)的正向发光亮度和效率分别约 1 150 cd/m²和 2.3 cd/A,而附有 PS 微球层器件正向发光亮度和效率分别约 1 250 cd/m²和 2.5 cd/A,正向发光亮度和效率提高了约 9%。

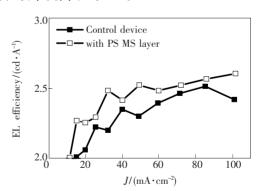


图 4 器件的电流密度-正向电致发光效率特性曲线
Fig. 4 The current density-normal direction EL efficiency
characteristics of OLEDs

## 4 结 论

采用自组装的方法(提拉法)在普通玻璃盖玻片衬底上制备了 PS 微球层。对其进行简单的热处理可获得类似微透镜的结构,利用折射率匹配液将其耦合在常规 OLEDs 的出光面,可

将限制在玻璃衬底中的部分光耦合到前向外部 空间,从而提高 OLEDs 器件正方向的发光亮度 (效率)。初步的研究结果表明了上述方法的可 行性。我们将进一步优化制备工艺和器件结 构,如直接在 ITO 玻璃衬底上制备微球层、基于 微球层微结构的可控热处理制备等,希望获得 更好的结果。另外,我们认为这种方法可能用 于有机照明领域。

#### 参考文献:

- [1] Jia Yong, Deng Zhenbo, Xiao Jing, et al. The effect of PBD as electrontransporting layer in Alq<sub>3</sub>: DCJTB organic light emitting devices [J]. Chin. J. Lumin. (发光学报), 2008, **29**(1):23-26 (in English).
- [2] Han Shiliang, Yuan Yongbo, Lian Jiarong, *et al.* The effects of ITO anode resistance on OLEDs performance [J]. *Chin. J. Lumin.* (发光学报), 2008, **29**(3):429-432 (in Chinese).
- [3] Gu G, Garbuzov D Z, Burrows P E, et al. High-external-quantum-efficiency organic light-emitting devices [J]. Opt. Lett., 1997, 22(6):396-398.
- [4] Yamasaki T, Sumioka K, Tsutsui T. Organic light-emitting device with an ordered monolayer of silica microspheres as a sacttering medium [J]. Appl. Phys. Lett., 2000, 76(10):1243-1245.
- [ 5 ] Madigan C F, Lu M H, Sturm J C. Improvement of output coupling efficiency of organic light-emitting diodes by backside substrate modification [ J ]. Appl. Phys. Lett., 2000, 76(13):1650-1652.
- [6] Moeller S, Forrest S R. Improved light out-coupling in organic light emitting diodes employing ordered microlens arrays [J]. J. Appl. Phys., 2002, 91(5):3324-3327.
- [7] Shiang J J, Faircloth T J, Duggal A R. Experimental demonstration of increased organic light emitting device output via volumetric light scattering [J]. J. Appl. Phys., 2004, 95(5):2889-2895.
- [8] Xu Y M, Wang X Y, Zhang C P, et al. The coupling efficiency of the light output of OLED [J]. Acta Scientiarum Naturalium Universitatis Nankaiensis (南开大学学报,自然科学版), 2005, 38(4):95-99 (in Chinese).
- [9] Li F, Li X, Zhang J H, Yang B. Enhanced light extraction from organic light-emitting devices by using microcontact printed silica colloidal crystals [J]. Org. Electron., 2007, 8(5):635-639.
- [10] Wei M K, Li J H, Lin H Y, et al. Efficiency improvement and spectral shift of an organic light-emitting device by attaching a hexagon-based microlens array [J]. J. Opt. A: Pure Appl. Opt., 2008, 10(11):1-9.
- [11] Lee J H, Ho Y H, Chen K Y, et al. Efficiency improvement and image quality of organic light-emitting display by attaching cylindrical microlens arrays [J]. Opt. Express, 2008, 16(26):21184-21190.

# Improvement of OLED Outcoupling Efficiency Using Microsphere Monolayer

QIAO Xiao-ping, YUAN Yong-bo, ZHOU Xiang

(State Key Laboratory of Optoelectronic Materials and Technologies, Sun Yat-Sen University, Guangzhou 510275, China)

**Abstract:** Organic light-emitting diodes (OLEDs) are of considerable interest in flat panel displays and lighting applications due to their many advantages, however, only about 20% light generated from the organic layer in the devices can escape to external forward space due to total internal reflection effect. Therefore, many methods have been used to increase the outcoupling efficiency of the devices. In this article, a monolayer of polyethylene (PS) microspheres (MS) with diameter of around 3 μm was prepared by self-assembly method on microscope cover glass. The microlens-like structure was obtained by annealing the PS MS monolayer at 120 °C for around 20 min. The annealed PS MS monolayer was then optically coupled (by refractive-index-

matched material) on the outside of an OLED, with structure of Glass/ITO(40 nm)/NPB(40 nm)/Alq<sub>3</sub>(60 nm)/LiF (1 nm)/Al (100 nm) as a light scattering layer. The OLEDs with the annealed monolayer of PS MS exhibit improved normal direction luminance and efficiency (about 9% at the current density of 50 mA/cm<sup>2</sup> and the luminance round 1 250 cd/m<sup>2</sup>) compared to the control devices, which indicated that part of the light confined within the glass substrates can be extracted to the external forward space through scattering effects of the annealed monolayer of PS MS.

Key words: organic light emitting diodes; microsphere monolayer; outcoupling efficiency

**CLC number**: TN383.1; TN873.3

PACS: 78.60. Fi

**PACC:** 7860F

Document code: A

Received date: 2009-08-30

#### 欢迎订阅《光机电信息》(月刊)

本刊由中国光学学会、中国科学院长春光学精密机械与物理研究所主办,科学出版社出版。

本刊征集光学和应用光学、光电子学和激光、微纳科技、材料科学、电磁学和电子学、机械、信息科学和技术等几大领域如下形式的文章:

1. 研究信息快报

本栏目主要报道最新研究成果、阶段新结果、片段新结果的介绍或说明,不要求是纯学术论文。目的是为那些尚未能形成正式研究论文,但希望把已有的最新研究成果、阶段或片段新结果抢先发表的科研工作者提供一个平台,保护广大科研人员的知识产权。主要内容包括研究背景简介、研究过程或实验过程简述、观察到的结果、数据及相关信息说明、评论等,附图表数据等,也可附参考文献(一般不要求)。本栏目发表的论文数据不影响在正式发表论文时使用。

本栏目出版周期:收稿日期为每月5日之后、25日之前收到,下月即出版发表。如为当月5号之前收到,当月发表。

2. 研究快报

本栏目主要征集研究新成果的快速报道,要求同其他刊物的研究快报。要求具有如下内容:摘要、关键词、研究背景(引言)、研究过程或实验过程、研究结果、参考文献。

3. 研究评论

对当前最新研究结果或研究动态的评论和展望,或基于他人研究结果的二次开发或更深层次的研究结果报道。

- 4. 综述文章
- (1)综述本领域或本学科的研究成果和进展、发展动态和趋势;(2)作者本研究群体的研究工作综述。
- 5. 研究论文

征集研究新结果的学术论文。

6. 应用开发类论文

接受各类大学、研究所、企业自主研发的新产品性能报道和新应用报道;新型器件在系统应用结果方面的报道等。这类论文是反映企业研发创新和对自身产品的再认识的能力、并能够让用户更好地了解产品性能、拓展应用范围的手段。本栏目论文具有产品推广广告作用。

7. 成果信息和研发信息

本栏目主要为大学、研究所等研发部门发布研究成果信息或项目工程研发信息;企业需要开发或攻关的项目信息等。目的是为研发部门和企业之间架起沟通桥梁。

8. 各类形式的企业宣传、广告,具体来电来函商谈,本刊做各类宣传、广告,费用低廉。

"好酒也怕巷子深"——您的产品多一份广告就会多一份收益,低廉的费用可以节约销售人员的出差费用,而效费比高,广告范围广。

在我们这里刊登的广告哪怕只为您带来一个客户——您就收回了广告成本,同时也给您带来了久远的影响和效益。 纸版的广告+电子版的广告——更值得客户信赖,更能为您培养潜在的中、远期客户。

网上投稿: E-mail: gjdxxw@ gmail. com, xxfw@ ciomp. ac. cn

学报地址: 长春市东南湖大路 3888 号 邮编: 130033