

文章编号: 1000-7032(2018)03-0315-07

高效率 N 掺杂有机电致发光器件的研制

于瑶瑶, 喻 叶, 林雯嫣, 吴志军, 林 薇*

(华侨大学 信息科学与工程学院, 福建 厦门 361021)

摘要: 为了改善有机电致发光器件的性能, 利用 CsN_3 作为 N 掺杂剂, 以 B3PYPPM 为电子传输材料, 制备了基于绿色磷光材料 $\text{Ir}(\text{ppy})_3$ 的高效率有机电致发光器件。针对不同 N 掺杂浓度和掺杂厚度的器件进行研究, 最终得到最佳 N 掺杂器件 B, 器件结构为 ITO/HAT-CN(5 nm)/TAPC(70 nm)/TCTA: $\text{Ir}(\text{ppy})_3$ (15%, 20 nm)/B3PYPPM(17 nm)/B3PYPPM: CsN_3 (10%, 63 nm)/Al。实验结果表明, 浓度与厚度适当的 N 掺杂器件能有效提高器件的电流效率和功率效率。 CsN_3 作为一种高效的 N 掺杂剂, 与电子传输材料 B3PYPPM 掺杂后, 有效地降低了电子的注入势垒, 增加了电子注入, 提高了电子迁移率, 改善了电子的注入和传输能力, 使载流子更加平衡, 从而降低了器件的开启电压和驱动电压, 有效地提高了电流效率和功率效率。最佳 N 掺杂器件 B 开启电压仅为 2.1 V, 最大电流效率和功率效率分别为 67.0 cd/A, 91.1 lm/W。值得注意的是, 在 1 000 cd/m² 亮度下, 最佳 N 掺杂器件 B 的功率效率仍能达到 80.1 lm/W。

关键词: CsN_3 ; B3PYPPM; N 掺杂剂; 电流效率; 功率效率

中图分类号: TN383+.1; TN312+.8

文献标识码: A

DOI: 10.3788/fjxb20183903.0315

Highly Efficient N-doped Organic Light-emitting Devices

YU Yao-yao, YU Ye, LIN Wen-yan, WU Zhi-jun, LIN Wei*

(College of Information Science and Engineering, Huaqiao University, Xiamen 361021, China)

* Corresponding Author, E-mail: linwei0311@hqu.edu.cn

Abstract: For the purpose of improving the performance of organic light-emitting device (OLED), the green phosphorescent OLED was fabricated using $\text{Ir}(\text{ppy})_3$ as emitter and CsN_3 as N-dopant doped in B3PYPPM which functioned as electron-transporting layer (ETL). The N-doped device with best performance named device B comprising ITO/HAT-CN(5 nm)/TAPC(70 nm)/TCTA: $\text{Ir}(\text{ppy})_3$ (15%, 20 nm)/B3PYPPM(17 nm)/B3PYPPM: CsN_3 (10%, 63 nm)/Al was achieved by optimizing the doping concentration and the thickness of N-doped ETL. The results indicate that employing the N-doped ETL possessing proper doping concentration as well as thickness can enhance current efficiency and power efficiency dramatically. Served effectively as N-dopant in B3PYPPM, CsN_3 reduces the injection barrier for electron, enhances the electron conductivity, facilitates the electron injection and transportation and enhances the charge balance, leading to the decrease in turn on and operating voltages as well as improvement on current efficiency and power efficiency. The optimized N-doped device B shows rather low turn-on voltage with the value of 2.1 V, and the maximum efficiencies are 67.0 cd/A and 91.1 lm/W respectively. It is worthwhile to point out power efficiency of device B can also reach 80.1 lm/W at high luminance of 1 000 cd/m².

Key words: CsN_3 ; B3PYPPM; N-dopant; current efficiency; power efficiency

收稿日期: 2017-07-19; 修订日期: 2017-10-08

基金项目: 国家自然科学基金(61404053)资助项目

Supported by National Natural Science Foundation of China(61404053)

1 引 言

有机电致发光器件(Organic light emitting-device, OLED)已经在照明和平板显示领域表现出了巨大的潜力。其自发光、低成本、低功耗等优势,使得有机电致发光器件成为目前学术界和工业界的研究热点^[1-5]。高效率、低功耗无疑是有机电致发光器件研究者的共同目标。有机电致发光器件是电子和空穴同时存在的双载流子器件,电子和空穴的平衡是影响有机电致发光器件性能的主要原因之一。然而对于有机小分子材料而言,空穴传输材料的迁移率要远远大于电子传输材料的迁移率^[6],这就使得发光区中电子和空穴极为不平衡,极大地影响了有机电致发光器件的性能。因此提高电子的注入与传输,成为提高器件性能的重要因素。N 掺杂技术不仅能有效地增加器件中电子的浓度,提高电子传输层的电导率,而且能使掺杂层能带弯曲,使掺杂后的有机层与阴极之间形成欧姆接触,大大降低了电子注入势垒,从而降低了器件的驱动电压,有效地提高了 OLED 的发光效率。

在早期的 N 掺杂技术研究中,一般采用功函数较低的碱金属(例如:Li^[7]、Cs^[8])作为 N 掺杂剂,但是 Li、Cs 等碱金属性能极为活泼,极易与空气中的水、氧发生反应。此外, Li、Cs 等在有机物中容易发生扩散^[9],造成发光激子的猝灭,降低器件的发光效率。相比之下,像 Cs₂CO₃^[10]、Li₂CO₃^[11]、Rb₂CO₃^[12]等碱金属化合物在空气中性能比较稳定,在蒸镀的过程中能够分解出金属,可以有效地替代碱金属制作高性能的 N 掺杂器件。然而,碱金属化合物的蒸发温度远远高于常用电子传输材料的蒸发温度,高蒸发温度的碱金属化合物在与低蒸发温度的有机材料共同蒸镀时,由于蒸镀室内温度较高,会使得炉壁上的有机

材料放气^[13],污染蒸镀室腔壁,蒸镀室因而需要经常清洗,这不仅增加了器件制备工艺的难度,还破坏了原本稳定的工艺条件。CsN₃ 的蒸发温度约为 330 °C,低于 Cs₂CO₃ (650 °C)、Rb₂CO₃ (700 °C)^[14]等一般碱金属化合物的蒸发温度,并且与一般有机材料的蒸发温度接近,因此,将 CsN₃ 作为 N 掺杂剂可以避免 N 掺杂中的高温过程,极大地降低了 N 掺杂技术的复杂程度。

本文利用 CsN₃ 为 N 掺杂剂,以 B3PYPPM 为电子传输材料,制备了基于绿色磷光材料 Ir(ppy)₃ 的高效率 OLED 器件。针对不同 N 掺杂浓度和掺杂层厚度的器件进行了研究,结果表明,与参考器件相比, N 掺杂器件的开启电压得到了明显降低,同时,电流效率和功率效率也得到了较大提高。

2 实 验

实验中所用有机材料分子式如图 1 所示。其中,ITO 作为阳极,HAT-CN、TAPC 分别作为器件的空穴注入层和空穴传输层,TCTA 作为绿色磷光材料 Ir(ppy)₃ 的母体,CsN₃、B3PYPPM 分别作为 N 掺杂剂和电子传输材料,LiF 为电子注入层,Al 为阴极。将基片放到蒸镀室蒸镀之前首先对基片进行预处理。首先将表面镀有 ITO 的玻璃衬底用 5% 的 Decon90 溶液在 60 °C 条件下超声 5 min,然后用去离子水超声 2 次,每次 5 min,之后用酒精超声 10 min。将清洗完的基片用干燥的氮气吹干,放入烘箱烘干。烘干后将基片放入等离子清洗机进行氧等离子处理 5 min。最后将基片放入 LN-1103SC 多源有机气相沉积系统蒸镀室内进行蒸镀。在蒸镀过程中,系统真空始终保持在 5.0×10^{-5} Pa 以下,薄膜生长的速率及厚度通过晶体膜厚仪来监控。有机材料蒸镀速率为 0.1 nm/s,阴极 Al 蒸镀速率为 0.1 ~ 2 nm/s,掺杂比

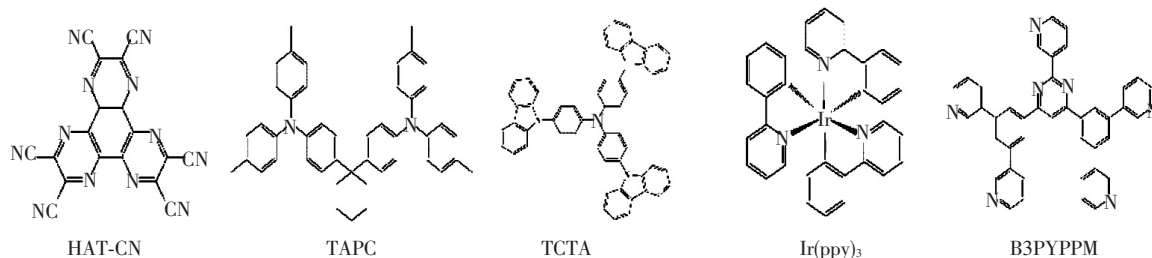


图 1 有机材料分子式

Fig. 1 Chemical structures of the materials

例为两种材料的速率之比,掺杂通过双源共蒸来实现。OLED有效发光面积为 $3\text{ mm} \times 3\text{ mm}$ 。器件的电压、亮度由 Keithley 2400 程控电源以及 LS-110 亮度计组成测试系统进行同步测量。所有测量都是在充满氮气的 Etelux Lab2000 手套箱中进行。

3 实验结果及分析

为了研究 CsN_3 N 掺杂剂在电子传输材料 B3PYPPM 中的掺杂浓度对器件性能的影响,首先我们制备了一组电子注入层不同的器件:

A1: ITO/HAT-CN (5 nm)/TAPC (55 nm)/TCTA: Ir (ppy)₃ (15%, 15 nm)/B3PYPPM (75 nm)/Al;

A2: ITO/HAT-CN (5 nm)/TAPC (55 nm)/TCTA: Ir (ppy)₃ (15%, 15 nm)/B3PYPPM (75 nm)/LiF (1 nm)/Al;

A3 ~ A5: ITO/HAT-CN (5 nm)/TAPC (55 nm)/TCTA: Ir (ppy)₃ (15%, 15 nm)/B3PYPPM (50 nm)/B3PYPPM: CsN_3 (X%, 25 nm, X = 5, 10, 15)/Al。

器件 A1 用未掺杂的 B3PYPPM 做电子传输层, A2 以 LiF 做电子注入层,与不同 N 掺杂浓度器件 A3 ~ A5 进行对比。

图 2 给出了器件 A1 ~ A5 的 V - J 、 V - L 、 L -CE-PE 曲线图,从图 2(a) 中可以看出,随着驱动电压的增加,器件 A1、A2 的电流密度曲线变化非常缓慢,而当 N 掺杂层做电子注入层时,随着电压的增加,器件电流密度逐渐增加,这说明 N 掺杂能有效地增加器件的电流密度。在相同驱动电压下, N 掺杂器件的电流密度和亮度均大于器件 A1、A2, N 掺杂浓度越高器件的电流密度和亮度越高。在 1000 cd/m^2 亮度下,器件 A1 ~ A5 的电压分别为 7.71, 4.72, 3.17, 3.02, 2.70 V, 与器件 A1 相比, N 掺杂器件电压明显降低。N 掺杂浓度越高, 1000 cd/m^2 亮度下器件的电压越低,这主要是因为器件进行 N 掺杂后,随着掺杂浓度的增加,注入的电子越来越多,电流密度增加,有更多的电子可以传输到发光层与空穴复合产生激子辐射发光,从而使器件亮度增加。

开启电压是器件在 1 cd/m^2 亮度下的电压,它反映了器件中载流子的注入情况,是衡量有机电致发光器件的重要性能参数。因此,我们也对

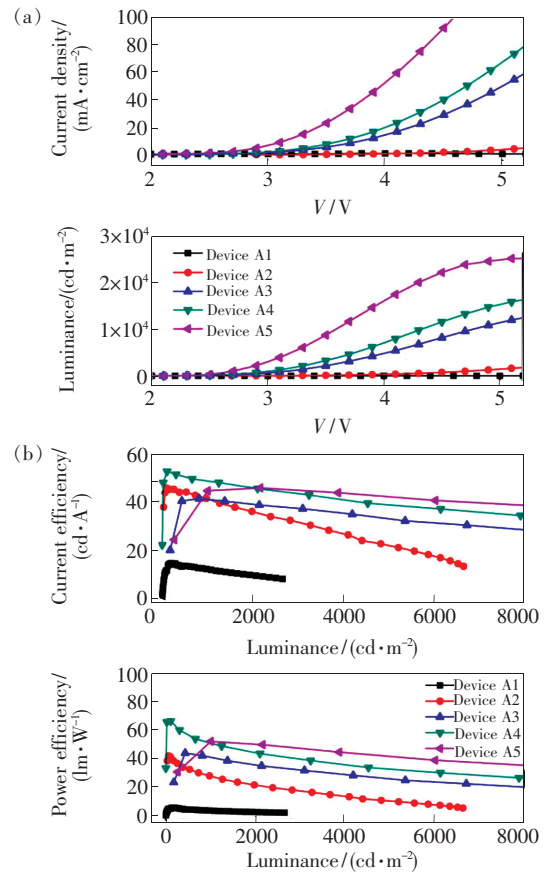


图 2 (a) 器件的 V - J 、 V - L 曲线; (b) 器件的 L -CE-PE 曲线。

Fig. 2 (a) Voltage-current density, voltage-luminance characteristics of the devices. (b) Luminance-current efficiency-power efficiency characteristics of the devices.

器件进行了开启电压的测量,测量所得器件 A1 ~ A5 的开启电压分别为 4.4, 2.4, 2.1, 2.1, 2.1 V。显然, N 掺杂器件的开启电压仅为 2.1 V, 明显低于未进行 N 掺杂的器件。据我们所知, 2.1 V 的开启电压普遍低于目前已报道过的 N 掺杂器件的开启电压^[15-17]。N 掺杂器件之所以有较低的开启电压, 主要是由于 CsN_3 与 B3PYPPM 掺杂后, CsN_3 在蒸镀的过程中会分解出单质 Cs^[18-19], 导致掺杂层中 Cs 过量, 形成富 Cs 状态, 使电流密度增加。器件的能级示意图如图 3 所示, 从图中可以看出, B3PYPPM 的 LUMO 能级为 -2.5 eV ^[20], Al 的费米能级为 -4.3 eV , 因此, 器件 N 掺杂前电子传输层与阴极界面间的注入势垒较大。而将 CsN_3 作为 N 掺杂剂与 B3PYPPM 掺杂后, 掺杂层的载流子浓度大大增加, 这时界面处的电荷将重新分配, 使得电子传输层的 LUMO 能级降低, 造成掺杂层能带弯曲^[21], 使掺杂层与阴极 Al 之间形成欧姆

接触,电子以隧穿的方式注入,大大降低了电子的注入势垒。而器件的注入电流与注入势垒有关,势垒降低提高了器件的电流密度,增加了传输到发光层的电子数目,使得更多的电子与空穴复合成激子辐射发光,进而提高了器件的亮度。在外加电场的作用下,随着电压的升高,电子注入更容易,电子迁移率增加,从而在低压下有更多的电子传输到发光层,降低了开启电压。

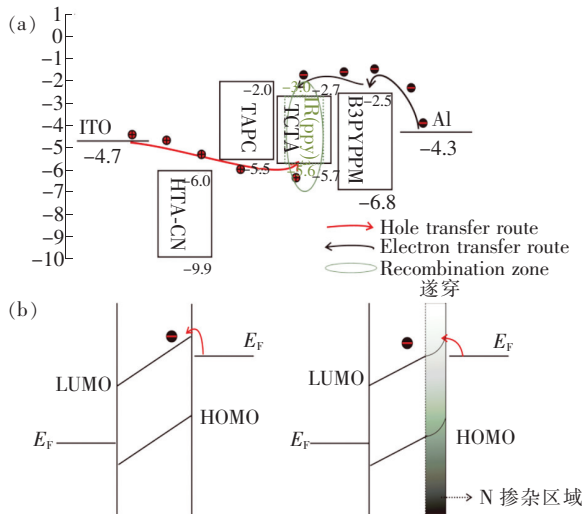


图 3 (a) 器件的能级示意图;(b) N 掺杂能级示意图。

Fig. 3 (a) Energy level of the device. (b) Energy level of N-doped device.

图 2(b) 给出了器件 A1 ~ A5 的 L -CE-PE 曲线图。从图中可以看出,器件 A2 ~ A5 的电流效率和功率效率均高于器件 A1,在低于 $1\ 000\ \text{cd}/\text{m}^2$ 亮度下,只有器件 A4 电流效率和功率效率均高于 LiF 器件。表 1 给出了器件 A1 ~ A5 的性能参数。从表 1 中可以看出,在 $100\ \text{cd}/\text{m}^2$ 亮度下,掺杂质量分数为 10% 的器件 A4 的电流效率和功率效率分别为 $51.9\ \text{cd}/\text{A}$ 、 $65.7\ \text{lm}/\text{W}$,均大于其他 4 个器件。此外,掺杂质量分数为 10% 的器件 A4 的最大电流效率与功率效率在所有器件中最高,分别为 $52.4\ \text{cd}/\text{A}$ 、 $65.8\ \text{lm}/\text{W}$,远大于未掺杂器件 A1 的 $14.4\ \text{cd}/\text{A}$ 、 $5.3\ \text{lm}/\text{W}$ 。

图 2 中,在相同电压下,掺杂质量分数为 15% 的器件 A5 电流密度和亮度均大于质量分数为 10% 的器件 A4,而器件 A5 的电流效率却低于器件 A4。这是因为器件 A5 的掺杂浓度高于器件 A4,即使相同电压下的电流密度高于器件 A4,但是由于浓度太高,造成三线态激子猝灭^[22],增加

了三线态激子猝灭辐射衰减的几率,从而降低了器件的电流效率。值得注意的是,在 $1\ 000\ \text{cd}/\text{m}^2$ 亮度下,器件 A4 的功率效率为 $50.4\ \text{lm}/\text{W}$,而 LiF 器件仅为 $27.3\ \text{lm}/\text{W}$,约为 LiF 器件的 1.8 倍。出现这种现象最直接的原因是器件进行 N 掺杂后降低了器件的驱动电压,从而提高了 N 掺杂器件的功率效率;而根本原因在于,器件进行 N 掺杂之后,能带弯曲降低了电子的注入势垒,提高了电子迁移率,使器件中电子浓度增加,传输到发光区与空穴复合的电子增加,载流子更平衡,从而提高了器件的电流效率和功率效率。

表 1 器件 A1 ~ A4 性能参数

Tab. 1 Characteristics of the device A1 - A4

Device	CE/($\text{cd} \cdot \text{A}^{-1}$)			PE/($\text{lm} \cdot \text{W}^{-1}$)		
	η_{Max}	η_{100}	η_{1000}	η_{Max}	η_{100}	η_{1000}
A1	14.4	11.4	11.9	5.3	4.6	3.3
A2	45.5	45.3	41.1	41.5	40.9	27.3
A3	41.2	13.5	40.8	43.5	16.5	40.5
A4	52.4	51.9	48.4	65.8	65.7	50.4
A5	45.6	15.4	44.3	51.6	20.6	51.5

为了更好地分析 N 掺杂提高器件电流密度的原因,我们制备了一组单电子器件,研究了不同 N 掺杂浓度下电子传输层的电导率。图 4 给出了不同 N 掺杂质量分数下单电子器件的 E - J 曲线。从图中可以看出,随着电场强度的增加,所有器件的电流密度与电场强度均成线性关系。这说明, N 掺杂使 B3PYPPM:CsN₃/Al 界面形成欧姆接触,能有效地增加电子的注入。在相同电场强度下, N 掺杂浓度越高,器件的电流密度越大。根据实验数据,我们计算出了不同 N 掺杂浓度下电子

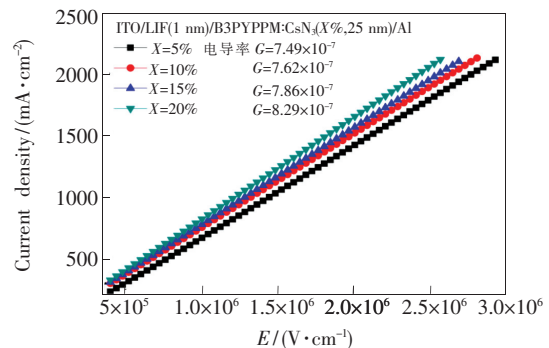


图 4 器件的 E - J 曲线

Fig. 4 Electric field-current density characteristics of the devices

传输层的电导率,如图 4 所示。在未掺杂条件下, B3PYPPM 电导率要远远低于 Bphen, 但将 B3PYPPM 进行 N 掺杂后, 相比于未掺杂的 Bphen^[23], 电导率却提高了 3 个数量级。因此, N 掺杂层电导率的增加也是导致器件电流密度增加的原因。

为了研究器件厚度对 N 掺杂器件性能的影响以及进一步优化 N 掺杂器件, 我们在最佳 N 掺杂浓度器件 A4 的基础上对器件进行了一系列厚度变换, 最后得到最优化器件 B: ITO/HAT-CN (5 nm)/TAPC (70 nm)/TCTA: Ir(ppy)₃ (15%, 20 nm)/B3PYPPM (17 nm)/B3PYPPM: CsN₃ (10%, 63 nm)/Al。

图 5 给出了器件 A4 与 B 的 *J-V-L*、*L-CE-PE* 曲线图, 从图 5(a) 可以看出, 相同电压下, 器件 B 的电流密度、亮度都高于器件 A4。表 2 给出了电压与电流密度和亮度的数据, 从表中可以看出, 相同电流密度和亮度下器件 B 电压均低于器件 A4。

图 5(b) 给出了器件 A4 与器件 B 的 *L-CE-PE* 曲线图, 从图中可以看出, 相同亮度下, 器件 B 的电流效率和功率效率均大于器件 A4。表 3 给出

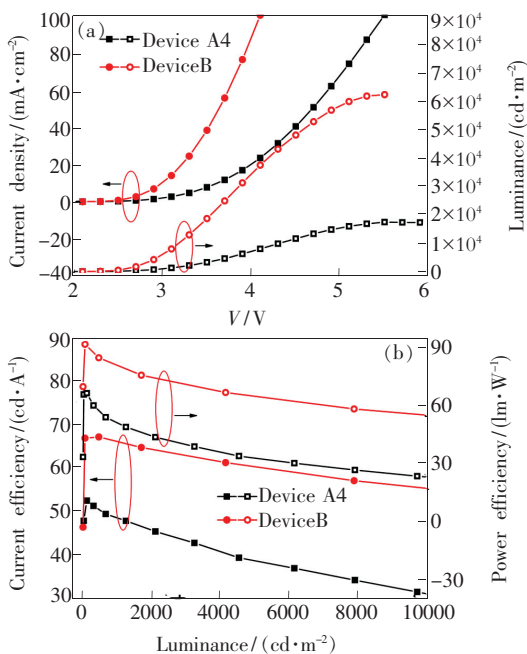


图 5 (a) 器件 A4 和 B 的 *J-V-L* 曲线; (b) 器件 A4 和 B 的 *L-CE-PE* 曲线。

Fig. 5 (a) Current density-voltage-luminance characteristics of device A4 and B. (b) Luminance-current efficiency-power efficiency characteristics of device A4 and B.

表 2 电压与电流密度、亮度关系

Tab. 2 Characteristics of Voltage-current density, voltage-luminance

Device	V/V		V/V		
	<i>J</i> ₅	<i>J</i> ₁₀	<i>L</i> ₁₀₀	<i>L</i> ₁₀₀₀	<i>L</i> ₁₀₀₀₀
A4	3.33	3.62	2.48	3.02	4.34
B	2.82	2.99	2.32	2.59	3.19

了亮度与电流效率、功率效率的关系, 从表中可以看出, 器件 A4、B 最大电流效率、最大功率效率分别为 52.4 cd/A、65.8 lm/W、67.0 cd/A、91.1 lm/W, 并且, 在 1 000 cd/m² 亮度下器件 B 功率效率仍能达到 80.1 lm/W。

表 3 亮度与电流效率、功率效率关系

Tab. 3 Characteristics of luminance-current efficiency, power efficiency

Device	CE/(cd · A ⁻¹)			PE/(lm · W ⁻¹)		
	η_{Max}	η_{100}	η_{1000}	η_{Max}	η_{100}	η_{1000}
A4	52.4	51.9	48.4	65.8	65.7	50.4
B	67.0	66.7	65.9	91.1	90.3	80.1

相对于器件 A4, 器件 B 的掺杂层厚度增加到 63 nm。在掺杂质量分数 10% 的条件下, 掺杂层厚度的增加, 提高了电子的注入能力, 增加了电流密度。同时, 未掺杂的 B3PYPPM 层减小到 17 nm, 这使得传输到发光区内的电子增加, 与空穴复合产生激子辐射发光的电子增加, 从而使亮度增大。因此, 在相同电压下, 器件 B 的电流密度和亮度大于器件 A4。同时, 发光区增加到 20 nm, 拓宽了激子复合区, 有效地将电子和空穴限制在发光区内, 减小了漏电流, 载流子更加平衡, 提高了器件的电流效率和功率效率。

由于 N 掺杂技术在实验过程中重复性和可控性具有一定难度, 而 CsN₃ 薄层器件既可以避免 N 掺杂实验中存在的这些问题, 又能通过 Cs 界面的扩散同样起到改善电子传输的目的。因此我们用 CsN₃ 薄层代替 N 掺杂层制备了器件 C: ITO/HAT-CN (5 nm)/TAPC (70 nm)/TCTA: Ir(ppy)₃ (15%, 20 nm)/B3PYPPM (80 nm)/CsN₃ (1 nm)/Al。

图 6 给出了器件 B 与 C 的 *J-V-L*、*L-CE-PE* 曲线图, 相同电压下, 器件 B 的电流密度和亮度都远大于器件 C, 在 100 cd/m² 亮度下, 器件 C 的电流效率和功率效率分别为器件 B 的 2.0 和 2.5 倍。因

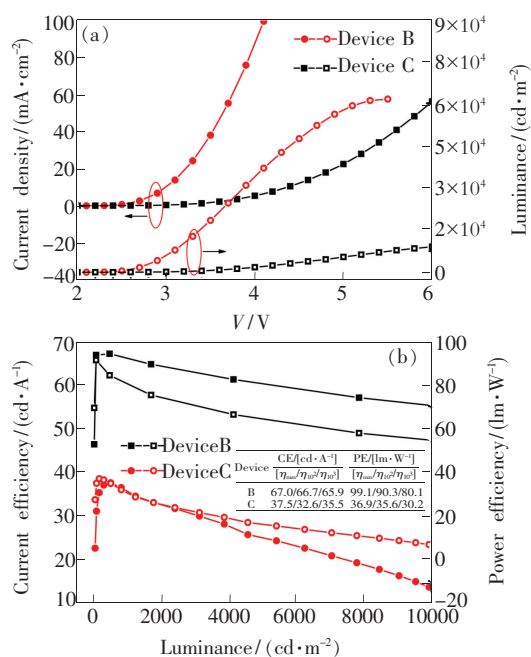


图 6 (a) 器件 B、C 的 J - V - L 曲线; (b) 器件 B、C 的 L -CE-PE 曲线。

Fig. 6 (a) Current density-voltage-luminance characteristics of device B and C. (b) Luminance-current efficiency-power efficiency characteristics of device B and C.

此,相比于 CsN_3 薄层器件,N 掺杂器件的效果更好。

4 结 论

本文以 CsN_3 为 N 掺杂剂,对电子传输材料 B3PYPPM 进行 N 掺杂,制备了不同 N 掺杂浓度和厚度的高效率绿色磷光 N 掺杂器件。N 掺杂技术能够使掺杂层能带弯曲,进而使掺杂层与阴极 Al 界面形成欧姆接触,大大降低了电子注入势垒,电子注入增加,提高了电子传输层的电导率,使载流子更加平衡,不仅降低了器件的开启电压,而且提高了器件的电流效率和功率效率。实验结果表明,在不同 N 掺杂浓度实验中,N 掺杂质量分数为 10% 的器件 A4 性能最好,在 $1\ 000\ \text{cd}/\text{m}^2$ 亮度下,器件 A4 的功率效率为 $50.4\ \text{lm}/\text{W}$,而 LiF 器件仅为 $27.3\ \text{lm}/\text{W}$,约为 LiF 器件的 1.8 倍。我们在最佳 N 掺杂浓度器件 A4 的基础上进一步优化得到最佳 N 掺杂器件 B,开启电压仅为 $2.1\ \text{V}$,最大电流效率、功率效率分别为 $67.0\ \text{cd}/\text{A}$ 、 $91.1\ \text{lm}/\text{W}$,在 $1\ 000\ \text{cd}/\text{m}^2$ 亮度下,最佳 N 掺杂器件 B 的功率效率仍能达到 $80.1\ \text{lm}/\text{W}$ 。

参 考 文 献:

- [1] OHISA S, PU Y J, KIDO J J. Poly (pyridinium iodide ionic liquid)-based electron injection layers for solution-processed organic light-emitting devices [J]. *J. Mater. Chem. C*, 2016, 4(28):6713-6719.
- [2] 祖洁, 陈平, 盛任, 等. 高效率的蓝色磷光有机电致发光器件 [J]. *发光学报*, 2017, 38(4):487-491.
ZU J, CHEN P, SHENG R, *et al.*. Highly efficient blue organic light-emitting diodes [J]. *Chin. J. Lumin.*, 2017, 38(4):487-491. (in Chinese)
- [3] 马东阁. OLED 显示与照明——从基础研究到未来的应用 [J]. *液晶与显示*, 2016, 31(3):229-241.
MA D G. OLED display and lighting—from basic research to future applications [J]. *Chin. J. Liq. Cryst. Disp.*, 2016, 31(3):229-241. (in Chinese)
- [4] 陈星明, 胡胜坤, 金玉, 等. 不同发光染料的顶发射有机电致发光器件的研制 [J]. *发光学报*, 2016, 37(4):446-451.
CHEN X M, HU S K, JIN Y, *et al.*. Top-emitting organic light-emitting devices with different luminescent dyes [J]. *Chin. J. Lumin.*, 2016, 37(4):446-451. (in Chinese)
- [5] 于瑶瑶, 陈星明, 金玉, 等. 利用 CsN_3 n 型掺杂电子传输层改善 OLED 器件性能的研究 [J]. *液晶与显示*, 2016, 31(8):773-777.
YU Y Y, CHEN X M, JIN Y, *et al.*. Improved properties of organic light-emitting devices by utilizing CsN_3 n-type doped electron transport layer [J]. *Chin. J. Liq. Cryst. Disp.*, 2016, 31(8):773-777. (in Chinese)
- [6] XIANG C Y, KOO W, SO F, *et al.*. A systematic study on efficiency enhancements in phosphorescent green, red and blue microcavity organic light emitting devices [J]. *Light: Sci. Appl.*, 2013, 2(6):e74.
- [7] DING L, SUN Y Q, CHEN H, *et al.*. A novel intermediate connector with improved charge generation and separation for large-area tandem white organic lighting devices [J]. *J. Mater. Chem. C*, 2014, 2(48):10403-10408.
- [8] SUN H D, GUO Q G, YANG D Z, *et al.*. High efficiency tandem organic light emitting diode using an organic heterojunction as the charge generation layer: an investigation into the charge generation model and device performance [J]. *ACS*

Photon., 2015, 2(2):271-279.

- [9] BIN Z Y, DUAN L, QIU Y. Air stable organic salt as an n-type dopant for efficient and stable organic light-emitting diodes [J]. *ACS Appl. Mater. Interf.*, 2015, 7(12):6444-6450.
- [10] YAO L, LI L, QIN L X, *et al.*. Efficient small molecular organic light emitting diode with graphene cathode covered by a Sm layer with nano-hollows and n-doped by Bphen: Cs₂CO₃ in the hollows [J]. *Nanotechnology*, 2017, 28(10):105201.
- [11] QIN D S, WANG M X, CHEN Y H, *et al.*. The charge generation layer incorporating two p-doped hole transport layers for improving the performance of tandem organic light emitting diodes [J]. *Eur. Phys. J.-Appl. Phys.*, 2014, 67(3):423-429.
- [12] LU C Y, JIAO M, LEE W K, *et al.*. Achieving above 60% external quantum efficiency in organic light-emitting devices using ITO-free low-index transparent electrode and emitters with preferential horizontal emitting dipoles [J]. *Adv. Funct. Mater.*, 2016, 26(19):3250-3258.
- [13] SHEN L Y, WU X M, HUA Y L, *et al.*. Improving the efficiency of blue organic light-emitting diodes by employing Cs-derivatives as the n-dopant [J]. *Acta Phys.-Chim. Sinica*, 2012, 28(6):1497-1501.
- [14] YU Y Y, CHEN X M, JIN Y, *et al.*. Electron-transporting layer doped with Cesium azide for high performance phosphorescent and tandem white organic light-emitting devices [J]. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 2017, 50(27):275104.
- [15] KAO P C, CHIU C T. MoO₃ as p-type dopant for Alq₃-based p-i-n homojunction organic light-emitting diodes [J]. *Org. Electron.*, 2015, 26:443-450.
- [16] SUN H D, CHEN Y H, CHEN J S, *et al.*. Interconnectors in tandem organic light emitting diodes and their influence on device performance [J]. *IEEE J. Select. Top. Quant. Electron.*, 2016, 22(1):154-163.
- [17] CHU X B, GUAN M, NIU L T, *et al.*. The utilization of low-temperature evaporable CsN₃-doped NBphen as an alternative and efficient electron-injection layer in OLED [J]. *Phys. Stat. Sol. (a)*, 2014, 211(7):1605-1609.
- [18] YOON K S, JEON S O, MIN S Y, *et al.*. Highly efficient p-i-n and tandem organic light-emitting devices using an air-stable and low-temperature-evaporable metal azide as an n-dopant [J]. *Adv. Funct. Mater.*, 2010, 20(11):1797-1802.
- [19] DENG Y H, LI Y Q, OU Q D, *et al.*. The doping effect of cesium-based compounds on carrier transport and operational stability in organic light-emitting diodes [J]. *Org. Electron.*, 2014, 15(6):1215-1221.
- [20] LIU M, SU S J, JUNG M C, *et al.*. Hybrid heterocycle-containing electron-transport materials synthesized by regioselective Suzuki cross-coupling reactions for highly efficient phosphorescent OLEDs with unprecedented low operating voltage [J]. *Chem. Mater.*, 2012, 24(20):3817-3827.
- [21] YANG J P, XIAO Y, DENG Y H, *et al.*. Electric-field-assisted charge generation and separation process in transition metal oxide-based interconnectors for tandem organic light-emitting diodes [J]. *Adv. Funct. Mater.*, 2012, 22(3):600-608.
- [22] LUO Y C, AZIZ H. Probing triplet-triplet annihilation zone and determining triplet exciton diffusion length by using delayed electroluminescence [J]. *J. Appl. Phys.*, 2010, 107(9):094510.
- [23] EOM S H, ZHENG Y, WRZESNIEWSKI E, *et al.*. Effect of electron injection and transport materials on efficiency of deep-blue phosphorescent organic light-emitting devices [J]. *Org. Electron.*, 2009, 10(4):686-691.



于瑶瑶(1993-),女,山东淄博人,硕士研究生,2015年于曲阜师范大学获得学士学位,主要从事有机电致发光器件的研究。

E-mail: yuyaococo@163.com



林薇(1982-),女,福建福州人,硕士,讲师,2007年于电子科技大学获得硕士学位,主要从事有机电致发光器件的研究。

E-mail: linwei0311@hqu.edu.cn