



## 交流驱动的绿色透明有机电致发光器件

张祥, 陈逸凡, 刘士浩, 张乐天, 谢文法

引用本文:

张祥, 陈逸凡, 刘士浩, 等. 交流驱动的绿色透明有机电致发光器件[J]. *发光学报*, 2021, 42(2): 153–157.

ZHANG Xiang, CHEN Yi-fan, LIU Shi-hao, et al. Alternating Current Driven Green Transparent Organic Light-emitting Devices[J]. *Chinese Journal of Luminescence*, 2021, 42(2): 153–157.

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.37188/CJL.20200384>

## 您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

### 单向发射的透明红光有机发光器件

One-direction-emission Red Transparent Organic Light-emitting Devices

发光学报. 2014(11): 1354–1358 <https://doi.org/10.3788/fgxb20143511.1354>

### 高效叠层有机电致发光器件的研制

Fabrication of Highly Efficient Tandem Organic Light-emitting Device

发光学报. 2019, 40(10): 1281–1287 <https://doi.org/10.3788/fgxb20194010.1281>

### IPTO薄膜制备及其在有机光电器件中的应用

Preparation of Transparent Conductive Praseodymium Titanate Doped Indium Oxide Film and Its Application in Organic Opto-electronic Devices

发光学报. 2015(10): 1162–1166 <https://doi.org/10.3788/fgxb20153610.1162>

### 不同发光染料的顶发射有机电致发光器件的研制

Top-emitting Organic Light-emitting Devices with Different Luminescent Dyes

发光学报. 2016, 37(4): 446–451 <https://doi.org/10.3788/fgxb20163704.0446>

### 高效率N掺杂有机电致发光器件的研制

Highly Efficient N-doped Organic Light-emitting Devices

发光学报. 2018, 39(3): 315–321 <https://doi.org/10.3788/fgxb20183903.0315>

文章编号: 1000-7032(2021)02-0153-05

# 交流驱动的绿色透明有机电致发光器件

张 祥, 陈逸凡, 刘士浩, 张乐天, 谢文法\*

(吉林大学电子科学与工程学院 集成光电子学国家重点实验室吉林大学实验区, 吉林 长春 130012)

**摘要:** 采用半透明的镁银合金阴极成功制备了直流驱动的绿色透明有机电致发光器件, 并在此基础上, 提出利用半透明的镁银合金中间连接层连接两个发光子单元的新型器件结构, 从而成功实现了交流驱动的绿色透明有机电致发光器件。在钢锡氧化物和镁银合金两侧的出光方向上, 器件的光谱完全一致, 最大亮度分别达到  $1\ 374\ \text{cd}/\text{m}^2$  和  $283\ \text{cd}/\text{m}^2$ , 最高效率分别达到  $26.1\ \text{cd}/\text{A}$  ( $8.1\ \text{lm}/\text{W}$ ) 和  $3.5\ \text{cd}/\text{A}$  ( $1.7\ \text{lm}/\text{W}$ ), 钢锡氧化物一侧的性能较好是由于钢锡氧化物电极和镁银合金中间连接层的透过率不同形成的。在低频交流电驱动下, 器件的两个发光子单元交替发出绿光; 而在高频交流电驱动下, 由于人眼无法分辨交替点亮时的闪烁, 两个发光子单元对于人眼而言则是同时且稳定地发出绿光。

**关键词:** 交流驱动; 透明; 有机发光器件

中图分类号: TN383.1

文献标识码: A

DOI: 10.37188/CJL.20200384

## Alternating Current Driven Green Transparent Organic Light-emitting Devices

ZHANG Xiang, CHEN Yi-fan, LIU Shi-hao, ZHANG Le-tian, XIE Wen-fa\*

*(State Key Laboratory of Integrated Optoelectronics, Jilin University Region,**College of Electronic Science and Engineering, Jilin University, Changchun 130012, China)**\* Corresponding Author, E-mail: xiewf@jlu.edu.cn*

**Abstract:** Direct current driven green transparent organic light-emitting device utilizing transparent Mg: Ag cathode was fabricated. Then, novel device structure employing transparent Mg: Ag interconnecting layer to connect two light-emitting units was proposed to realize alternating current driven green transparent organic light-emitting device (AC-TOLED). The spectra of AC-TOLED were almost identical in the direction of light output on indium tin oxide (ITO) and Mg: Ag sides. The maximum brightness was  $1\ 374\ \text{cd}/\text{m}^2$  and  $283\ \text{cd}/\text{m}^2$ , respectively. And the maximum efficiency was  $26.1\ \text{cd}/\text{A}$  ( $8.1\ \text{lm}/\text{W}$ ) and  $3.5\ \text{cd}/\text{A}$  ( $1.7\ \text{lm}/\text{W}$ ), respectively. The higher performance of ITO side was caused by the different transmission of ITO electrode and Mg: Ag interconnecting layer. Under low frequency alternating current, the two light-emitting units of AC-TOLED emitted green light alternately. However, the two light-emitting units of AC-TOLED emitted green light simultaneously for human eyes under high frequency alternating current, because human eyes cannot distinguish the flicker of each unit during alternative emission.

**Key words:** alternating current driven; transparent; organic light-emitting device

收稿日期: 2020-12-14; 修订日期: 2020-12-26

基金项目: 国家自然科学基金(61774074, 61905086); 吉林省科技发展计划(20190101024JH, 20200201296JC)资助项目

Supported by National Natural Science Foundation of China(61774074, 61905086); Science and Technology Development Planning of Jilin Province(20190101024JH, 20200201296JC)

有机电致发光器件(Organic light-emitting device, OLED)作为一种面光源,具有自发光、全固化显示、响应速度快、功耗低、轻薄和可实现柔性显示等优势,在显示和照明领域逐渐展现出了巨大的应用价值和市场前景。自 1987 年 Tang 团队首次实现三明治结构的 OLED 器件以来, OLED 技术近些年取得了飞速的发展,器件效率和器件寿命得到了极大的改善<sup>[1-6]</sup>,从而推动了 OLED 技术的发展和产业化。目前,高效双线态自由基发光二极管已经实现了最高 27% 的外量子效率,其内量子效率接近 100%<sup>[7]</sup>。

根据光的出射方向不同, OLED 可以被分为底发射器件、顶发射器件和透明器件。由于透明器件在未通电开启时是半透明的,在开启时两面都可以发光或者显示信息,因此透明器件相比于底发射器件和顶发射器件具有独特的优势。它的应用和设计更加灵活,可以被广泛应用于汽车挡风玻璃、博物馆展柜玻璃、窗户、眼镜、电视等。目前,透明 OLED 的研究也取得了快速发展<sup>[8]</sup>。2014 年,谢文法团队报道了基于 Ag/Ge/Ag 透明金属的高效白光透明有机发光器件<sup>[9]</sup>;2015 年, Lee 团队报道了利用转移法制备的基于聚合物聚(3,4-乙烯二氧噻吩)-聚苯乙烯磺酸(PEDOT:PSS)电极的高效透明有机发光器件<sup>[10]</sup>;2015 年, Wu 团队也提出了基于石墨烯阴极的全湿法蓝光透明有机发光器件<sup>[11]</sup>。

然而,目前常规 OLED 一般都是由直流电(Direct current, DC)驱动,但家庭供电系统采用的是 50 Hz 的交流电(Alternating current, AC)。因此,如果能直接利用交流电驱动 OLED,将会使其具有更大的优势,不仅省电节能,更加适应人们的家居生活,还可以避免交流转直流电器设备,使得驱动电路更加简单。另外,利用交流电的频率、振幅等相关特性, OLED 将具有更高的可控性;同时交流驱动的 OLED 也将更易于集成,更适合未来的智能照明系统。目前,交流驱动的发光器件获得了快速发展<sup>[12-15]</sup>,有机发光器件主要有绝缘型和注入型两种方式<sup>[12]</sup>。例如,2014 年,Carroll 团队报道了采用铁电聚合物材料 P(VDF-TrFE-CFE)作为绝缘层的绝缘型交流驱动有机发光器件<sup>[16]</sup>;同年,Leo 团队也报道了颜色可调的注入型交流驱动有机发光器件<sup>[17]</sup>。

本文首先通过采用半透明的镁银合金阴极实

现了直流驱动的透明有机发光器件,并研究了器件的光电特性;在此基础上,提出了采用半透明镁银合金中间连接层连接两个发光子单元的新型器件结构,从而成功实现了绿光交流驱动的透明 OLED(AC driven transparent OLED, AC-TOLED)。同时,还研究了 AC-TOLED 的亮度、效率和光谱等光电特性,及交流电频率特性对 AC-TOLED 工作的影响。

首先将带有铟锡氧化物(ITO)的衬底依次用 Decon 90 清洗和去离子水超声清洗后放入 120 °C 烘箱中烘干 10 min,再紫外臭氧处理 5 min。接下来,将处理好的衬底转移到多源有机分子气相沉积系统内,腔室的真空度维持在低于  $6 \times 10^{-4}$  Pa 水平。然后依次沉积 3 nm 的 MoO<sub>3</sub>、40 nm 的 4,4',4''-三(咔唑-9-基)三苯胺(TcTa)、30 nm 的 4,4-二(9-咔唑)联苯(CBP):10% 三(2-苯基吡啶)合铱[Ir(PPy)<sub>3</sub>]、40 nm 的 4,7-二苯基-1,10-菲罗啉(Bphen)、2 nm 的 LiF 以及 20 nm 的 Mg:10% Ag,蒸镀速率控制在 0.1 nm/s 左右,并用石英晶体膜厚仪实时监测过程中的厚度,其中单个发光单元的有效发光面积为 10 mm<sup>2</sup>。器件的电流、电压、亮度、效率以及光谱通过吉时利 2400 和 大家光电测试仪 GP500 进行测量,电极的透过率采用 UV-1750 进行测试,交流电信号源采用安捷伦 B2902A。所有测量均是在室温大气环境中进行。

图 1 所示为绿光直流驱动的透明 OLED(DC driven transparent OLED, DC-TOLED)示意图,器件结构为玻璃衬底/ITO/MoO<sub>3</sub> 3 nm/TcTa 40 nm/CBP:10% Ir(PPy)<sub>3</sub> 30 nm/Bphen 40 nm/LiF 2 nm/Mg:10% Ag 20 nm。

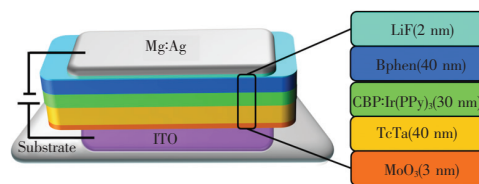


图 1 直流驱动绿光透明 OLED 器件结构示意图

Fig. 1 Schematic of green DC-TOLED

图 2(a)、(b)为绿光 DC-TOLED 的器件性能,从图中可知器件在电极两侧出光方向的开启电压均低于 3.5 V。在 10 V 驱动电压下,器件在 ITO 和镁银合金出光方向上的最大亮度分别为 61 578 cd/m<sup>2</sup> 和 7 521 cd/m<sup>2</sup>;器件在 ITO 一侧出光方向上的最大电流效率为 25.3 cd/A,最大功

率效率为 17.5 lm/W;而在镁银合金一侧的最大电流效率为 3.3 cd/A,最大功率效率为 2.2 lm/W。从以上结果可以看出,ITO 一侧的出光方向器件开启电压更低,并且相同电压下的亮度和相同亮度下的效率要高于镁银合金出光一侧,这是因为 ITO 和镁银合金的透过率存在差异导致的。

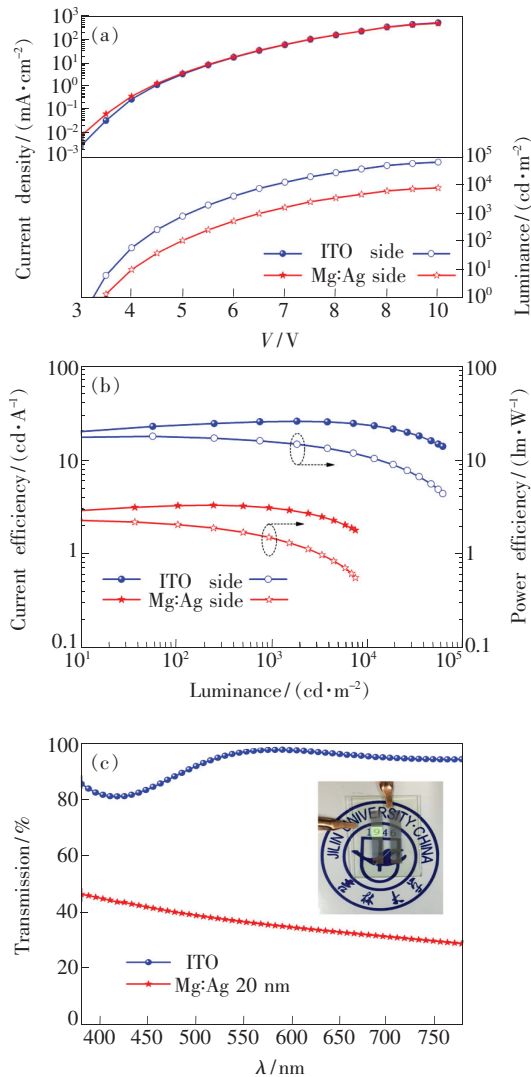


图 2 绿光 DC-TOLED 的电流密度-电压-亮度特性曲线 (a)和电流效率-亮度-功率效率特性曲线(b);(c) ITO 和 Mg: Ag 的透过率,插图为器件点亮时的照片。

Fig. 2 Current density-voltage-luminance (V-J-L) curve (a) and current efficiency-luminance-power efficiency curve(b) of DC-TOLED. (c) Transmission of ITO and Mg: Ag. Insert is the picture of the device.

图 2(c)所示为 ITO 和镁银合金的透过率,插图显示了器件工作时的照片。ITO 在绿光区域透过率超过 90%;而对于镁银合金而言,其在绿光区域透过率只有 37%左右,远远低于 ITO 的透

率。所以,在镁银合金一侧的器件性能要明显低于 ITO 一侧的器件性能。

图 3 为 AC-TOLED 的器件结构图,由两个完全相同的发光子单元构成,子单元结构和 DC-TOLED 完全相同。两个发光子单元的 ITO 是电极端,用于施加外部驱动信号,镁银合金薄层是连接发光子单元的中间连接层,其本身并不施加任何驱动信号。

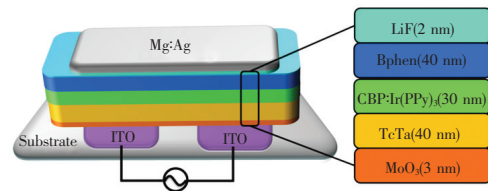


图 3 交流驱动的绿色透明 OLED 器件结构示意图

Fig. 3 Schematic of green AC-TOLED

值得注意的是,由于在空间上横向排列的两个发光子单元器件结构和材料完全相同,所以两个发光子单元可以同时制备,这大幅度简化了器件的制备工艺和难度。为测试 AC-TOLED 的电学性能,先以交流电的正半周期为例,即右侧 ITO 为阳极,左侧 ITO 为阴极,器件性能如图 4 所示。

从图 4(a)中可以看出,由于 AC-TOLED 由两个发光子单元构成,其工作电压要高于直流驱动的器件,AC-TOLED 器件在两侧出光方向的开启电压为 8 V 左右,最大亮度分别为 1 374 cd/m<sup>2</sup> 和 283 cd/m<sup>2</sup>。从图 4(b)中可知,器件在 ITO 一侧的最大电流效率为 26.1 cd/A,最大功率效率为 8.1 lm/W;而在镁银合金一侧的最大电流效率为 3.5 cd/A,最大功率效率为 1.7 lm/W。与 DC-TOLED 类似,由于 ITO 的透过率明显高于镁银合金中间连接层的透过率,所以 ITO 一侧的出光方向上,开启电压更低,相同条件下器件的亮度和效率更高。图 4(c)为 AC-TOLED 器件在两个出光方向上归一化的电致发光光谱,从图中可以看出 AC-TOLED 在两个出射方向上的光谱完全一致,都对应于染料 Ir(PPy)<sub>3</sub> 的特征发光。

图 5 所示为 AC-TOLED 工作时的照片和工作原理图。在交流电的正半周期,如图 5(a)所示,即右侧发光子单元的 ITO 为阳极,左侧发光子单元的 ITO 为阴极,此时 AC-TOLED 只有右侧发光子单元会发光,而左侧发光子单元并不发光。

图 5(c)显示了 AC-TOLED 在正半周期的工



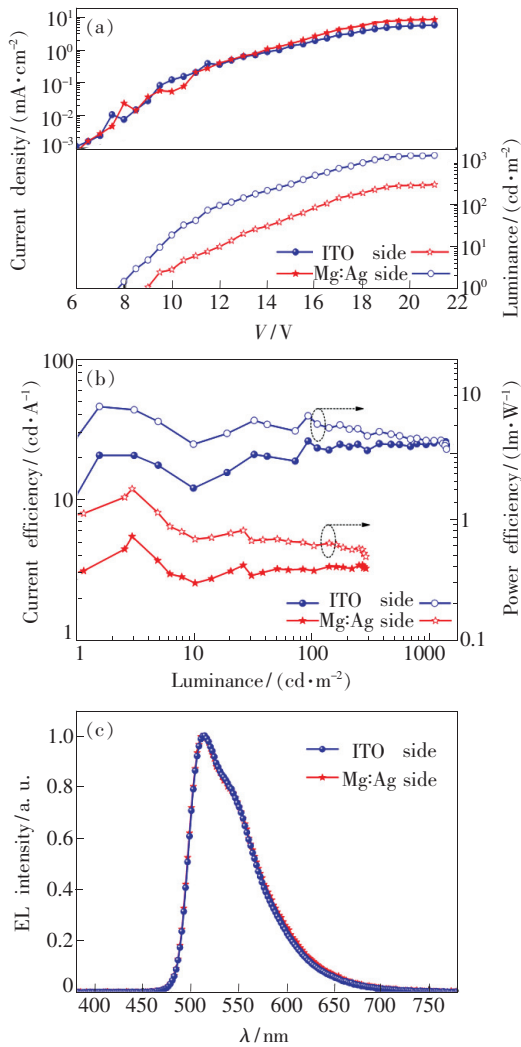


图 4 绿光 AC-TOLED 的电流密度-电压-亮度特性曲线(a)、  
电流效率-亮度-功率效率特性曲线(b)和光谱(c)。

Fig. 4  $V$ - $J$ - $L$  curve(a), current efficiency-luminance- power efficiency curve(b) and spectra(c) of green AC-TOLED.

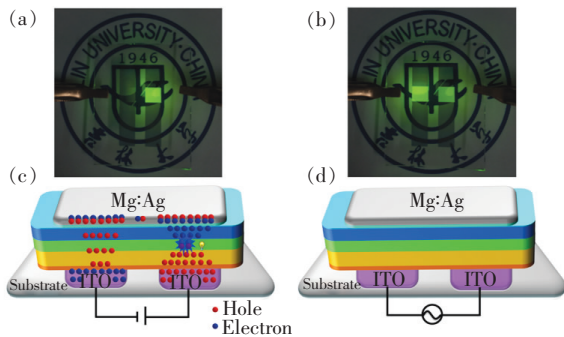


图 5 绿光 AC-TOLED 在交流电正半周期工作时的照片(a)  
和工作原理图(c),以及其在 50 Hz 交流电下工作时的  
照片(b)和 50 Hz 交流电器件驱动示意图(d)。

Fig. 5 Picture (a) and work mechanism (c) of green AC-TOLED under forward half-cycle of AC signal. Picture (b) and schematic (d) of green AC-TOLED under 50 Hz AC signal.

作原理图。镁银合金中间连接层在外加电场驱动下会产生感应电荷,此时在右侧发光子单元中,ITO 注入的空穴与从中间连接层注入的感应电子形成激子,从而产生辐射复合发出绿光;而在左侧发光子单元中,感应空穴将会通过有机功能层到达左侧电极 ITO 的界面与电子进行中和,这在我们先前的工作中已经得到了证实<sup>[18]</sup>,所以在交流电的正半周期下有且只有右侧发光子单元会发光。由于 AC-TOLED 具有左右完全对称的器件结构,所以在交流电的负半周期,将会获得相似的结果,即有且只有左侧发光子单元会发光。所以,AC-TOLED 的两个发光子单元分别对应于交流电的正负半周期,并在交流电的正负半周期有且只有一个会被点亮。

若直接采用交流电驱动,如图 5 (d) 所示,AC-TOLED 的 ITO 将依次交替作为阳极和阴极,当交流电的频率为 1 Hz 时,两个发光子单元依次交替被点亮;随着交流电频率的不断增加,两个发光子单元交替点亮的频率也不断增加,当频率达到 50 Hz 时,如图 5 (b) 所示,人眼将无法分辨两个发光子单元交替点亮时产生的闪烁,此时两个发光子单元对于人眼而言便是同时发光的,AC-TOLED 从交替点亮闪烁的动态显示变成了稳定的静态显示。另外,由于交流电的引入,施加在发光子单元上的反向电压将抑制发光子单元中的载流子积累,从而在一定程度上将会改善器件的寿命<sup>[19]</sup>。因此,我们实现了高效的交流驱动的绿色透明有机电致发光器件。

本文成功制备了直流驱动的绿色透明有机电致发光器件 OLED,并在此基础上,通过使用镁银合金作为中间连接层的新型器件结构,成功制备了交流驱动的绿色透明有机电致发光器件,并研究了 AC-TOLED 的光电特性。AC-TOLED 在 ITO 和镁银合金两个出射方向上的发光光谱完全一致,最大亮度分别达到了  $1\ 374\ \text{cd}/\text{m}^2$  和  $283\ \text{cd}/\text{m}^2$ ,最高效率分别达到了  $26.1\ \text{cd}/\text{A}$  ( $8.1\ \text{lm}/\text{W}$ ) 和  $3.5\ \text{cd}/\text{A}$  ( $1.7\ \text{lm}/\text{W}$ );并且 AC-TOLED 展现出了优异的交流电驱动特性,在 50 Hz 交流电驱动下,AC-TOLED 对于人眼而言能够获得稳定的静态显示。以上结果有助于推动交流驱动的有机电致发光器件的发展。

## 参 考 文 献:

- [ 1 ] TANG C W, VANSLYKE S A. Organic electroluminescent diodes [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 1987, 51(12):913-915.
- [ 2 ] SASABE H, KIDO J. Development of high performance OLEDs for general lighting [J]. *J. Mater. Chem. C*, 2013, 1(9):1699-1707.
- [ 3 ] YIN Y M, ALI M U, XIE W F, *et al.*. Evolution of white organic light-emitting devices: from academic research to lighting and display applications [J]. *Mater. Chem. Front.*, 2019, 3(6):970-1031.
- [ 4 ] WU Z B, MA D G. Recent advances in white organic light-emitting diodes [J]. *Mater. Sci. Eng. R Rep.*, 2016, 107:1-42.
- [ 5 ] XU R P, LI Y Q, TANG J X. Recent advances in flexible organic light-emitting diodes [J]. *J. Mater. Chem. C*, 2016, 4(39):9116-9142.
- [ 6 ] HUANG T Y, JIANG W, DUAN L. Recent progress in solution processable TADF materials for organic light-emitting diodes [J]. *J. Mater. Chem. C*, 2018, 6(21):5577-5596.
- [ 7 ] AI X, EVANS E W, DONG S Z, *et al.*. Efficient radical-based light-emitting diodes with doublet emission [J]. *Nature*, 2018, 563(7732):536-540.
- [ 8 ] LIU L H, CAO K, CHEN S F, *et al.*. Toward see-through optoelectronics: transparent light-emitting diodes and solar cells [J]. *Adv. Opt. Mater.*, 2020, 8(22):2001122.
- [ 9 ] LIU S H, LIU W B, YU J, *et al.*. Silver/germanium/silver: an effective transparent electrode for flexible organic light-emitting devices [J]. *J. Mater. Chem. C*, 2014, 2(5):835-840.
- [ 10 ] KIM N, KANG H, LEE J H, *et al.*. Highly conductive all-plastic electrodes fabricated using a novel chemically controlled transfer-printing method [J]. *Adv. Mater.*, 2015, 27(14):2317-2323.
- [ 11 ] CHANG J H, LIN W H, WANG P C, *et al.*. Solution-processed transparent blue organic light-emitting diodes with graphene as the top cathode [J]. *Sci. Rep.*, 2015, 5:9693-1-6.
- [ 12 ] PAN Y F, XIA Y D, ZHANG H J, *et al.*. Recent advances in alternating current-driven organic light-emitting devices [J]. *Adv. Mater.*, 2017, 29(44):1701441-1-14.
- [ 13 ] XIA F T, SUN X W, CHEN S M. Alternating-current driven quantum-dot light-emitting diodes with high brightness [J]. *Nanoscale*, 2019, 11(12):5231-5239.
- [ 14 ] SONG S H, PARK S J, BAE T J, *et al.*. All-solution-processed colour-tunable tandem quantum-dot light-emitting diode driven by AC signal [J]. *Nanoscale*, 2020, 12(32):17020-17028.
- [ 15 ] LIU X H, YU D J, HUO C X, *et al.*. A perovskite light-emitting device driven by low-frequency alternating current voltage [J]. *Adv. Opt. Mater.*, 2018, 6(16):1800206-1-10.
- [ 16 ] CHEN Y H, XIA Y D, SMITH G M, *et al.*. Frequency-dependent, alternating current-driven, field-induced polymer electroluminescent devices with high power efficiency [J]. *Adv. Mater.*, 2014, 26(48):8133-8140.
- [ 17 ] FRÖBEL M, SCHWAB T, KLIEM M, *et al.*. Get it white: color-tunable AC/DC OLEDs [J]. *Light: Sci. Appl.*, 2015, 4(2):e247-1-6.
- [ 18 ] ZHANG X, LIU S H, ZHANG L T, *et al.*. In-planar-electrodes organic light-emitting devices for smart lighting applications [J]. *Adv. Opt. Mater.*, 2019, 7(3):1800857-1-7.
- [ 19 ] SI Y J, ZHAO Y, CHEN X F, *et al.*. A simple and effective ac pixel driving circuit for active matrix OLED [J]. *IEEE Trans. Electron Devices*, 2003, 50(4):1137-1141.



张祥(1993 -),男,安徽天长人,博士研究生,2016年于吉林大学获得学士学位,主要从事电致发光器件方面的研究。

E-mail: xiangzhang18@mails.jlu.edu.cn



谢文法(1978 -),男,福建三明人,博士,教授,博士研究生导师,2004年于吉林大学获得博士学位,主要从事有机光电子学方面的研究。

E-mail: xiewf@jlu.edu.cn