导电聚合物作为连接层的叠层电致发光器件

杨明军¹, 牛连斌^{1*}, 陈丽佳¹, 张勇², 关云霞^{1*}, 陈平^{2*}

1. 重庆师范大学物理与电子工程学院, 重庆市光电功能材料重点实验室, 重庆 401331;

2. 西南大学物理科学与技术学院, 重庆 400715

*联系人, 牛连斌, E-mail: niulb03@126.com; 关云霞, E-mail: utk_lili@126.com; 陈平, E-mail: chenping206@126.com

收稿日期: 2020-01-21; 接受日期: 2020-02-28; 网络出版日期: 2020-05-27

国家自然科学基金(编号: 61874016, 11875010)、重庆市基础科学与前沿技术研究专项项目(编号: CSTC2017jcyjAX0333, CSTC2019jcyj-msxmX0148)、重庆市特殊人才支持计划(编号: T04040003)和重庆市洁净能源材料与技术重点实验室开放基金(编号: JJNY201907, JJNY201905)资助

摘要 有机电致发光器件(OLED)因具有全固态、主动发光、高色域、视角宽、非常轻薄和可折叠卷曲等优点,被认为是可取代液晶显示的技术之一。但是,由于这种器件使用的有机材料很容易与空气中的水和氧气发生反应,并且其玻璃化温度比较低,导致器件稳定性和效率比较低。因此通过某种方式提高器件的电流效率、减少器件的发热功耗,降低器件的运行电流,具有非常重要的意义。叠层(Stacked)器件结构技术是实现低电流、高效率OLED的一种有效途径。但是,如何利用简单的方法制作高效的叠层器件连接层,使电流高效地通过器件,是研制这种器件的重要挑战。本文利用PEDOT:PSS作为器件连接层,成功制备出结构为ITO/PEDOT:PSS (15 nm)/PFO (80 nm)/PEDOT:PSS (40 nm)/PFO (80 nm)/Al (70 nm)的叠层有机电致发光器件。通过研究叠层器件的电流-电压特性、电压-亮度特性和电流-效率特性发现,在未做任何特别优化的条件下,该叠层器件的启亮电压为12.3 V,启亮电流为1.39 μ A。电流效率(3.97 cd/A)是单层对比器件电流效率的8倍。更为重要的是,这种PEDOT:PSS新型叠层器件连接层既不需要高温蒸发镀膜也不需要掺杂。该方法既简化了Stacked叠层器件连接单元的制备工艺,避免了高温蒸镀对器件膜层的损伤,又克服了现有掺杂工艺原子散射对器件性能破坏的难题。同时,本文对PEDOT:PSS作为叠层有机电致发光器件连接层的物理机制进行了探讨。

关键词 有机电致发光器件, PEDOT:PSS, 叠层

PACS: 78.60.Fi, 78.66.Qn, 78.55.Kz

1 引言

2019年2月21日,三星在美国San Francisco向全球用户发布最新OLED手机产品Galaxy S10。这一事件表明,经过研发人员三十年的不懈努力,有机电致发光器

件(OLED)光电性能已经达到现在无机半导体(如p-n发光二极管)发光器件的水准^[1-7]。但是,要达到active全色域等移动端的特殊应用场景(如战斗机头盔等),器件的亮度、电流效率、寿命和稳定性等核心指标还需进一步提升。尤其是由于有机材料很容易与空气中的

引用格式: 杨明军, 牛连斌, 陈丽佳, 等. 导电聚合物作为连接层的叠层电致发光器件. 中国科学: 物理学 力学 天文学, 2020, 50: 074202
Yang M J, Niu L B, Chen L J, et al. Organic stacked light-emitting devices based on PEDOT:PSS layer (in Chinese). Sci Sin-Phys Mech Astron, 2020, 50: 074202, doi: 10.1360/SSPMA-2020-0019

水和氧气发生反应, 并且其玻璃化温度比较低, 导致其高温耐受性比较差, 因此通过某种方式, 提高器件的电流效率, 减少器件的发热功耗, 成为提高器件稳定性和增加其使用寿命的常用手段^[8,9]. 影响OLED寿命的重要原因之一是流过器件的大电流导致器件的热致老化^[10,11]. 因而, 研究一种在低电流下运行的高效率的器件有非常重要的意义.

叠层(Stacked)器件结构技术是实现低电流、高效率OLED的一种有效途径. 2004年, 柯达(KODAK)公司的Liao等人^[12]利用 $\text{Alq}_3\text{:Li/NPB:FeCl}_3$ 作为电荷产生层, 把两个发射层集成在同一个器件, 成功制成了结构是ITO/NPB (75 nm)/ Alq_3 (25 nm)/ $\text{Alq}_3\text{:Li}$ (25 nm)/NPB:FeCl₃ (60 nm)/NPB (25 nm)/ $\text{Alq}_3\text{:DCJTb}$ (20 nm)/ Alq_3 (40 nm)/Mg:Ag的Stacked器件. 与普通标准器件相比, 这种器件的优点是在相同的电流密度下, 器件的效率是普通器件的两倍. 利用Stacked器件结构, Chang等人^[13]已经研制成功荧光电流效率49.2 cd/A的Stacked器件. 2010年, Meyer研究小组^[14]也在器件机理方面做了比较深入细致的工作, 借助光电子能谱(XPS)表征技术对器件连接层界面进行了探究与分析, 探讨了器件界面之间不同材料能级的弯曲与改变程度, 进一步清晰地表明器件连接层就是电荷产生层, 这为开发出性能更优越的器件连接层指明了方向. Guo等人^[15]把Stacked结构成功应用在白光OLED器件. 他们利用BCP:Li/V₂O₅作为电荷产生层, 使这种器件的电流效率达到10.7 cd/A. 苏州大学唐建新课题组^[16]利用XPS技术, 对叠层OLED中间层Bphen/Mg:Bphen/MoO₃/NPB做了细致的能级分析, 从器件界面能级分析了器件电荷产生层的物理机制. 2016年9月, 南方科技大学陈树明课题组^[17]以ZnMgO/Al/HATCN为叠层发光器件电荷产生层, 制作了结构为ITO/PEDOT:PSS (40 nm)/PVK (30 nm)/QD (25 nm)/ZnMgO (40 nm)/Al (1 nm)/HATCN (10 nm)/NPB (50 nm)/CBP:10% Ir (ppy)₂(acac) (25 nm)/TPBi (50 nm)/LiF (1 nm)/Al (100 nm)的叠层器件. 这种器件的最大电流效率达到了96.28 cd/A, 最大外量子效率达到了25.9%. 2016年12月, OLED发明人——美国Rochester大学Tang课题组^[1]制作了结构为ITO/MoO_x/NPB/ Alq_3 /Bphen/Li(x)/MoO_x/NPB/ Alq_3 /Bphen/Li:Ag的叠层发光器件, 研究了Li和Ag的散射对器件性能的影响. 2019年9月, 韩国Cho等人^[18]利用BmPyPB:Li连接层研制成功效率高达

20 lm/W的白色叠层器件.

总之, Stacked器件为实现高效有机电致发光照明和显示功能开辟了一种崭新的途径. 各国OLED专家已对其产生了浓厚兴趣, 并且他们已经投入大量人力、物力去研究Stacked器件. 但是, 到目前为止, 叠层有机电致发光器件连接单元还面临以下问题亟待解决. (1) 器件连接单元薄膜使用金属和氧化物^[16](如Al, WO₃等), 这些材料的蒸镀温度很高(如Al的熔点为660°C, WO₃的熔点为1472°C), 蒸镀过程极易损坏有机薄膜, 使器件的性能降低^[19]; 并且金属和氧化物一般在可见光区光透过率都比较低, 这导致叠层器件的出光性能下降; 另外, 器件中间层蒸镀金属, 很容易引起器件短路. (2) 器件连接单元n型薄膜多为掺杂结构^[20], 对于n型掺杂, 掺杂层的客体一般为活泼金属原子(如金属Li和Cs)或活泼金属化合物(如LiF)等, 这些物质均有较长的离子扩散长度, 极易扩散到发光层, 导致发光激子淬灭, 使器件的效率大大降低^[1]; 另外, 在器件制备过程中, 由于蒸镀掺杂工艺不容易精确控制, 这增加了器件制备的复杂性^[21].

叠层器件是一种很有发展前景的低电流、高效率器件; 这种在低电流下运行的器件必然会减低由于热致老化而使器件寿命降低的不利影响. 但是, 纵观最近几年OLED的发展, 实验室研制成功的技术能否达到实用化和容易产业化的要求还是OLED走向市场的一个关键.

因而, 如果能为叠层有机电致发光器件成功研制一种既不需要高温蒸发镀膜又不需要掺杂工艺的新型连接单元, 将有重要的意义^[21].

本文利用PEDOT:PSS作为器件连接层, 成功制备出结构为ITO/PEDOT:PSS (15 nm)/PFO (80 nm)/PEDOT:PSS (40 nm)/PFO (80 nm)/Al (70 nm)的叠层有机电致发光器件. 这种新型连接层既不需要高温蒸发镀膜也不需要掺杂. 这种方法既简化了Stacked叠层器件连接单元的制备工艺, 避免了高温蒸镀对器件膜层的损伤, 又克服了现有掺杂工艺原子散射对器件性能破坏的难题.

2 材料和方法

本实验所用有机材料的分子结构和电致发光器件结构如图1所示. 镀膜系统使用重庆师范大学和沈阳九

达真空研究所联合研制的JD-2019型有机电致发光器件制造专用设备, 器件制备过程如下.

将衬底玻璃用丙酮(分析纯)、酒精(分析纯)、去离子水分别按照顺序超声12 min, 然后放入干燥柜110°C烘干95 min. 接着将基片放入氧等离子体处理室, 利用氧等离子体清洗12 min; 利用旋涂成膜的方法分别制备PEDOT:PSS和PFO薄膜, 厚度分别是40和80 nm. PEDOT与PSS的质量比是1:18, PEDOT和PSS水溶液的浓度是3%, pH值为1.5. 在高纯氮气的保护下, PEDOT与PSS薄膜在105°C烘烤30 min, 再120°C烘烤90 min. 待薄膜干燥后, 用机械传动手臂把基片传递至蒸镀室, 待真空度达到 4×10^{-5} Pa时开始镀膜, Al电极的厚度是70 nm. 用石英振荡仪实时监测Al薄膜层的成膜厚度和速率.

在Al薄膜成膜的过程中, 系统的真空度维持在 3×10^{-4} Pa左右. 器件的电压、亮度、电流、电致发光光谱等参数由计算机控制的可编程Keithley-2400数字源表和光谱仪组成的自动测量系统检测.

3 结果和讨论

在这里所指的普通单层器件是结构为ITO/PEDOT:PSS (15 nm)/PFO (80 nm)/Al (70 nm)的单层有机电致发光器件(为了便于阐述, 标记为A器件). 运用PSS: PEDOT作为连接层的叠层器件结构是ITO/PEDOT:PSS (15 nm)/PFO (80 nm)/PEDOT:PSS (40 nm)/PFO (80 nm)/Al (70 nm) (标记为B器件). 图1是各器件的详细结构示意图. 为了明白起见, A, B结构的器件光电特性测试数据简单概括于表1.

其中, 本论文的开启电压是指器件亮度为1 cd/m²时器件两端的偏置电压. 从表1可以知道, 器件A的电流效率是0.51 cd/A, 器件B的电流效率是3.97 cd/A. 叠层结构的器件B电流效率是单层器件A电流效率的8倍. 从图2可以看到, 在相同电流的情况下, 加在器件B的电压明显高于A的电压. 很明显, 这种高的电压是由B器件的叠层堆积结构造成.

我们接着研究器件的电压-亮度曲线, 从图2可以看到, A器件和B器件的开启电压分别是10.8和12.3 V. 器件B的开启电压是器件A的1.14倍, 这与传统叠层器件的“2倍关系”相差很大. 20 V时, 器件A和B亮度达到9784和5000 cd/m².

图1 (网络版彩图)器件使用的有机材料(PEDOT:PSS和PFO)分子结构式和器件结构示意图

Figure 1 (Color online) Molecular structures of organic materials (PEDOT:PSS and PFO) and schematic diagram of device structures.

表1 器件A和B的光电性能特性

Table 1 Photoelectric performance characteristics of A and B devices

器件	起亮电压 (V)	起亮电流 (μ A)	电流效率 (cd/A)	亮度 (20 V) (cd/m ²)
A	10.8	9.51	0.51	9784
B	12.3	1.39	3.97	5000

图2 (网络版彩图)室温下器件的电流强度-电压和亮度-电压特性曲线

Figure 2 (Color online) Current intensity-voltage and Luminance-voltage characteristic curves of device at room temperature.

器件B的连接层是PEDOT:PSS(分子结构式如图1所示)薄膜. PEDOT:PSS是由PEDOT和PSS两种有机物构成, 是一种聚合物高分子的水溶混合液, 导电率特别高^[22]. PEDOT是由EDOT(3,4-乙烯二氧噻吩单体)聚合而成, 这种有机材料化学结构异常特殊, 乙烯二氧基被

引入到其噻吩环3,4位上, 这既可高效阻断EDOT单体聚合时噻吩环上C_β-C_α的异常较连^[23], 使这种聚合物分子链整体变得更加整齐和有序排列, 又会增大其噻吩环上的有效电子载流子数目(态密度). 结合电化学相关原理, 这就可以降低聚合物单体的分子的氧化掺杂电位势和氧化电位势, 使其掺杂状态的聚合物导电性进一步稳定. 聚苯乙烯磺酸PSS, 在PEDOT:PSS光电薄膜中, 它有两个方面的重要功能: (1) 作为一种特殊的平衡离子, 可以使PEDOT主链上电荷态密度保持平衡; (2) PSS的亲水基功能团使PEDOT更好地分散在水溶剂中, 在PEDOT:PSS的薄膜结构中, 多个PEDOT短链掺杂于长链的PSS分子之间, 并在PEDOT:PSS交叠的核外层产生一层比较薄的PSS包裹功能层^[24].

近年来, PEDOT:PSS的导电理论和应用研究开展得非常深入和广泛, 主要集中在PEDOT衍生物的物理、化学与电化学聚合等方面(光、磁、电、热等理化性质和离子在聚合物中的迁移等基础理论研究)^[24,25]. 在前人的大量研究工作中, 重点研究了PEDOT:PSS薄膜作为ITO器件阳极缓冲层对光电器件特性的影响. 研究发现, 相应发光器件的导电性能或电流密度可以得到很大提高. 究其机理, 发现PEDOT:PSS薄膜沉积于阳极ITO, 其作用主要表现在以下两个方面. (1) 薄膜能级约为5.22 eV^[22,23], 高于ITO的功函数(4.75 eV)约0.47 eV, 可较好地与大多数空穴载流子传输材料的LUMO能级相适配, 根据空间电荷限制传导模型, 这就提高了空穴载流子注入器件的效率. (2) ITO是一种锡锡金属氧化混合物, 自身活泼, 很不稳定, 在其与有机材料活性功能层紧密接触时, 极易发生降解反应, 降低器件的光电性能. 如果器件插入PEDOT:PSS薄膜, 可以最大限度避免这一损害器件性能行为的发生. 另外, 本实验还用氧等离子体紫外线对沉积在器件ITO阳极上的PEDOT:PSS进行特殊照射处理, 处理过后PEDOT:PSS薄膜的功函数可以进一步提高, 从而更有利于器件A和B空穴从ITO注入器件.

众所周知, 要利用旋涂成膜的工艺方法制作叠层有机电致发光器件的连接层, 连接层一定不能对已经沉积的有机薄膜层造成破坏. PEDOT:PSS是水溶液, 恰好满足了这个苛刻条件. 水溶液不会对已经沉积的有机薄膜层溶解, 因此不会造成任何破坏. 图3是器件A和B的电流-效率曲线. 在电流密度为0.8 mA时, 器件A和B的电流效率分别是0.51和3.97 cd/A. 器件B的效

图3 (网络版彩图)室温下器件的电流-发光效率曲线图

Figure 3 (Color online) Current intensity-luminance efficiency curves at room temperature.

率是器件A的8倍.

与器件A相比, 为什么器件B的效率如此之高? 原因有如下几方面. 第一, PEDOT:PSS薄膜的导电性能与结构有序度、共轭链长度、微观结构形貌及掺杂等密切相关. 由于自身结构的优势, EDOT只能在2,5位聚合, 因而其结构有序度得到了较好解决. 但是, 没有掺杂的EDOT聚合时形成的聚合产物PEDOT很容易团聚, 而且这种本征态结构会阻碍载流子的传输^[23]. 掺杂剂PSS的引入使噻吩上的硫与掺杂剂相接, 因为亲水性官能团的相互作用, 使PEDOT长链能较好的打开, 改变了PEDOT的价态从而利于载流子的输运. 从掺杂过程来看, PEDOT:PSS水溶液的形成过程即作为一种释放电子的p型掺杂过程. 根据孤子理论, 掺杂的结果是增加了聚合物体系中载流子数量, 因此大大提高了聚合物的导电性能. 如图4所示, 我们用原子力显微镜(AFM)技术检测连接层PEDOT:PSS薄膜发现, PEDOT:PSS并不是溶解于水中, 而是生成了易于分散在水中的纳米胶体. 当纳米粒子的粒径较大时, 薄膜的电导率可达80 S/cm^[24].

第二, 当液体滴在固体薄膜表面时, 润湿程度的大小与接触角 θ 成正比(接触角(Contact Angle)是指在此固体表面上的气-液-固三相交界点处, 在液体一方的气-液界面的切线与固-液交界线之间的夹角 θ). 润湿过程与体系的界面张力有关. 一滴液体落在水平固体表面上达到平衡时, 形成的接触角与各界面张力之间的函数关系由Young Equation决定^[26], 即

$$\gamma_{s/A} = \gamma_{s/L} + \gamma_{L/A} \cos \theta,$$

式中, $\gamma_{s/A}$, $\gamma_{s/L}$, $\gamma_{L/A}$ 分别为固-气、液-气和固-液界面

图 4 (网络版彩图)室温下PEDOT:PSS薄膜沉积在PFO薄膜的形貌图

Figure 4 (Color online) AFM images of solution-processed PEDOT:PSS on PFO film at room temperature.

张力。

当PEDOT:PSS溶液沉积在有机材料PFO薄膜上面时, PEDOT:PSS亲水性和PFO的疏水性相互作用, 二者之间形成很高的接触角 θ 。在微观状态下, 形成数以亿计的微小半球。而这些微小半球阵列结构就像成千上万个微凸透镜, 可以增大光子的逃逸角, 如图5所示。逃逸角 θ_2 得到了增大($\theta_1 < \theta_2$), 提高了靠近阴极Al的PFO发光层的光的出射量, 从而提高了整个器件的光提取效率。

综上所述, 在连接单元PEDOT:PSS薄膜内部不产生电荷, 不是利用传统叠层器件连接单元的电荷产生层CGL效应^[12], 而是利用了PEDOT:PSS薄膜特殊的微观形态效应, 实现了叠层器件的连接功能, 提高了器件的光提取效率, 从而提高了器件的效率。

图6是电流密度为25 mA/cm²时器件A和B的电致发光归一化光谱。从图可知, 器件A和B的电致发光光谱几乎完全重合在一起, 发光峰值均位于约442 nm处, 在474 nm处有一肩峰。器件呈现蓝光发射, 对应于PFO的发光峰。这说明加入PEDOT:PSS薄膜连接层, 并未造成器件发光光谱的漂移, 也没有明显的半高全宽(FWHM)变化。并且, 电子和空穴复合的位置有效地被限制在了PFO薄膜层。

4 结论

本研究工作中, 运用旋涂成膜的方法, 利用PED-

图 5 (网络版彩图) (a) 没有PEDOT:PSS微小半球光路示意图(出射角 θ_1); (b) 有PEDOT:PSS微小半球光路示意图(出射角 θ_2)

Figure 5 (Color online) (a) Without PEDOT:PSS micro hemispherical optical path diagram (exit angle θ_1); (b) PEDOT:PSS micro hemispherical optical path diagram (exit angle θ_2).

图 6 (网络版彩图)器件A和B的电致发光归一化光谱

Figure 6 (Color online) Normalized EL spectra of the A and B devices.

OT:PSS薄膜高导电性和特殊的微观形态效应, 制作了结构是ITO/PEDOT:PSS (15 nm)/PFO (80 nm)/PEDOT:PSS (40 nm)/PFO (80 nm)/Al (70 nm)的叠层有机电致发光器件。PEDOT:PSS薄膜作为叠层器件的连接层。通过研究叠层器件的电流-电压特性、电压-亮度特性和电流-效率特性发现, 叠层器件B的效率高达3.97 cd/A, 是单层器件A的8倍。PEDOT:PSS薄膜不仅具有较高导电性, 而且提高了器件的出光效率。这种通过采用旋涂一次成膜的工艺制备叠层有机电致发光器件连接层的方法, 不但简化了器件制备流程, 而且不需要高温镀膜制备叠层器件连接层, 解决了目前困扰多年的叠层OLED连接层需要高温镀膜的难题。

致谢 特别感谢西南大学杨晓晖教授对本论文有益的帮助.

参考文献

- 1 Angel FA, Wallace J U, Tang C W. Effect of lithium and silver diffusion in single-stack and tandem OLED devices. *Org Electron*, 2017, 42: 102–106
- 2 Kim D H, D'Aléo A, Chen X K, et al. High-efficiency electroluminescence and amplified spontaneous emission from a thermally activated delayed fluorescent near-infrared emitter. *Nat Photon*, 2018, 12: 98–104
- 3 Gmelch M, Thomas H, Fries F, et al. Programmable transparent organic luminescent tags. *Sci Adv*, 2019, 5: 7310–7313
- 4 Zhou L, Tian X Y, Meng Y, et al. Studying the temperature-dependence of singlet exciton fission by using transient fluorescence technique (in Chinese). *Sci Sin-Phys Mech Astron*, 2017, 47: 067301 [周亮, 田晓语, 孟妍, 等. 利用瞬态荧光技术研究单重态激子裂变的温度依赖关系. 中国科学: 物理学 力学 天文学, 2017, 47: 067301]
- 5 Chiang K M, Huang Z Y, Tsai W L, et al. Orthogonally weaved silver nanowire networks for very efficient organic optoelectronic devices. *Org Electron*, 2017, 43: 15–20
- 6 Niu L B, Guan Y X. Organic light-emitting diodes based on sodium chloride buffer layer (in Chinese). *Sci Sin-Phys Mech Astron*, 2017, 47: 127303 [牛连斌, 关云霞. 氯化钠作为阴极缓冲层的有机电致发光器件. 中国科学: 物理学 力学 天文学, 2017, 47: 127303]
- 7 Zhang Y, Zhang D, Tsuboi T, et al. Simultaneous enhancement of efficiency and stability of OLEDs with thermally activated delayed fluorescence materials by modifying carbazoles with peripheral groups. *Sci China Chem*, 2019, 62: 393–402
- 8 Niu L, Chen L, Tao S, et al. Spin-orbit coupling effects on energy transfer channel in organic semiconductors. *J Mol Liquids*, 2018, 259: 411–415
- 9 Mathai M K, Choong V E, Choulis S A, et al. Highly efficient solution processed blue organic electrophosphorescence with 14 lm/W luminous efficacy. *Appl Phys Lett*, 2006, 88: 243512
- 10 Niu L, Guan Y, Kong C, et al. Highly efficient bipolar connecting layers for tandem organic light-emitting devices. *Appl Phys B*, 2011, 105: 857–862
- 11 Gong J R, Wan L J, Lei S B, et al. Direct evidence of molecular aggregation and degradation mechanism of organic light-emitting diodes under joule heating: An STM and photoluminescence study. *J Phys Chem B*, 2005, 109: 1675–1682
- 12 Liao L S, Klubek K P, Tang C W. High-efficiency tandem organic light-emitting diodes. *Appl Phys Lett*, 2004, 84: 167–169
- 13 Chang C C, Hwang S W, Chen C H, et al. High-efficiency organic electroluminescent device with multiple emitting units. *Jpn J Appl Phys*, 2004, 43: 6418–6422
- 14 Meyer J, Kröger M, Hamwi S, et al. Charge generation layers comprising transition metal-oxide/organic interfaces: Electronic structure and charge generation mechanism. *Appl Phys Lett*, 2010, 96: 193302
- 15 Guo F, Ma D. White organic light-emitting diodes based on tandem structures. *Appl Phys Lett*, 2005, 87: 173510
- 16 Bao Q Y, Yang J P, Li Y Q, et al. Electronic structures of MoO₃-based charge generation layer for tandem organic light-emitting diodes. *Appl Phys Lett*, 2010, 97: 063303
- 17 Zhang H, Feng Y, Chen S. Improved efficiency and enhanced color quality of light-emitting diodes with quantum dot and organic hybrid tandem structure. *ACS Appl Mater Interfaces*, 2016, 8: 26982–26988
- 18 Cho H, Song J, Kwon B H, et al. Stabilizing color shift of tandem white organic light-emitting diodes. *J Industrial Eng Chem*, 2019, 69: 414–421
- 19 Park J, Lee J, Shin D, et al. Luminance uniformity of large-area OLEDs with an auxiliary metal electrode. *J Display Technol*, 2009, 5: 306–311
- 20 Kanno H, Holmes R, Sun Y, et al. White stacked electrophosphorescent organic light-Emitting devices employing MoO₃ as a charge-generation layer. *Adv Mater*, 2006, 18: 339–342
- 21 Sun H, Chen Y, Chen J, et al. Interconnectors in tandem organic light emitting diodes and their influence on device performance. *IEEE J Sel Top Quantum Electron*, 2016, 22: 154–163
- 22 Fenwick O, Oliver K, Cacialli F. Cross-linking of a poly(3,4-ethylene dioxothiophene):(polystyrene sulfonic acid) hole injection layer with a bis-azide salt and the effect of atmospheric processing conditions on device properties. *Appl Phys Lett*, 2012, 100: 053309
- 23 Li J. Study the doping and modification of PEDOT:PSS film and its application in organic solar cells (in Chinese). Dissertation for Doctoral Degree. Qingdao: Ocean University of China, 2010. 20–22 [李蛟. PEDOT:PSS薄膜的掺杂改性及其在有机太阳能电池中的应用研究. 博士学位论文. 青岛: 中国海洋大学, 2010. 20–22]

位论文. 青岛: 中国海洋大学, 2010. 20–22]

- 24 Heywang G, Jonas F. Poly(alkylenedioxythiophene)s—new, very stable conducting polymers. *Adv Mater*, 1992, 4: 116–118
- 25 Carlberg C. Ionic transport and electronic structure in poly(3,4ethylenedioxythiophene). *Solid State Ion*, 1996, 85: 73–78
- 26 Chibowski E, Perea-Carpio R. Problems of contact angle and solid surface free energy determination. *Adv Colloid Interface Sci*, 2002, 98: 245–264

Organic stacked light-emitting devices based on PEDOT:PSS layer

YANG MingJun¹, NIU LianBin^{1*}, CHEN LiJia¹, ZHANG Yong²,
GUAN YunXia^{1*} & CHEN Ping^{2*}

¹ Chongqing Key Laboratory of Optical Electronic Functional Materials, College of Physics and Electronic Engineering, Chongqing Normal University, Chongqing 401331, China;

² School of Physical Science and Technology, Southwest University, Chongqing 400715, China

Organic light-emitting devices (OLEDs) have been the intensive investigation subject in recent years due to their applications in lighting and displays. The typical OLED structure usually consists of a transparent indium-tin-oxide bottom anode, a top metal cathode, and some organic layers sandwiched between electrodes. After 30 years of unremitting efforts, the performance of OLEDs has been close to the level of inorganic semiconductor light-emitting devices. However, in order to achieve the final application goal of dynamic panchromatic HD display, the luminous efficiency and stability of the device need to be further improved. Especially because organic materials are not resistant to high temperature, improving the luminous efficiency of the device and reducing the heat loss become the key to improving the stability and service life of the device. One of the important factors that affect the life of OLEDs is the thermal aging caused by the high current flowing through it. Therefore, it is of great significance to study a kind of high efficiency device operating at low current. Stacked device structure technology is an effective way to realize low current and high efficiency OLEDs. The major challenge in stacked OLEDs in general is to prepare the effective connecting layer between emitting units so that the current can smoothly flow through without manufacturing difficulties. In this paper, we use PEDOT:PSS as the connecting layer of the device, and successfully prepare the stack organic light-emitting device with ITO/PEDOT:PSS (15 nm)/PFO (80 nm)/PEDOT:PSS (40 nm)/PFO (80 nm)/Al (70 nm) structure. By studying the current-voltage characteristics, voltage-brightness characteristics and current-efficiency characteristics, it is found that the illumination voltage and the illumination current are 12.3 V and 1.39 μ A, respectively. The current efficiency (3.97 cd/A) is 8 times higher than that of single-layer comparator. The connection layer of this new type of PEDOT:PSS stack device needs neither high temperature evaporation coating nor doping. This method not only simplifies the preparation process of the connection unit of the stacked device, avoids the damage of the device film caused by high temperature evaporation, but also overcomes the problem of the damage of the device performance caused by the atomic scattering of the existing doping process. At the same time, the physical mechanism of PEDOT:PSS as the connecting layer of stacked OLED is discussed.

organic light-emitting device (OLED), PEDOT:PSS, stacked

PACS: 78.60.Fi, 78.66.Qn, 78.55.Kz

doi: [10.1360/SSPMA-2020-0019](https://doi.org/10.1360/SSPMA-2020-0019)