



بیست و یکمین کنفرانس اپتیک و فوتونیک ایران
و هفتمین کنفرانس مهندسی و فناوری فوتونیک ایران
۲۳ تا ۲۵ دی ماه ۱۳۹۳، دانشگاه شهید بهشتی



مدلی فیزیکی برای ناپایداری درازمدت در دیود نورگسیل از نوع آلی، OLED

شهریار جاماسب

دانشگاه صنعتی همدان، دانشکده مهندسی پزشکی، همدان، ایران ۶۵۱۵۵

چکیده - در این ارائه یک مدل فیزیکی کمی برای توضیح پدیده ناپایداری در دیود نورگسیل از نوع آلی مطرح می‌شود. پدیده ناپایداری درازمدت در دیود نورگسیل از نوع آلی بصورت کاهش در لومینسانس (نورافشانی) با گذشت زمان ظاهر می‌شود. انتقال پاشنده باربرها در لایه گسیل‌کننده نور، که با حرکت جهشی میان ترازهای انرژی تله همراه است، بعنوان عامل ناپایداری در این نوع از دیودها توجیه شده است. مدل پیشنهادی بطور کمی داده های لومینسانس بر حسب زمان را با دقتی بالا پیش‌بینی می‌کند.

کلید واژه - انتقال پاشنده، دیود نورگسیل از نوع آلی، زوال نمایی کشیده، قانون توان، ناپایداری درازمدت.

A Physical Model for Long-term Instability in Organic Light-emitting Diodes, OLEDs

Shahriar Jamasb

Department of Biomedical Engineering, Hamedan University of Technology, Hamedan, 65155, Iran

Abstract- A physical model for instability in organic light-emitting diodes (OLEDs) is presented. In OLED, instability manifests itself as a monotonic temporal decrease in luminous intensity. The mechanism underlying instability in OLED is shown to be associated with dispersive transport involving hopping between trap states in the light-emitting layer. The proposed model exhibits quantitative agreement with measured luminous intensity data.

Keywords: Dispersive transport, Long-term instability, Organic light-emitting diode, power law, stretched exponential decay

۱- مقدمه

اخیرا ادوات الکترونیکی آلی بدلیل هزینه ساخت پایین و کارایی بالای آنها در پاره ای از کاربردها مانند نورافشانی بعنوان جانشینی برای ادوات نیمرسانای مرسوم مطرح شده‌اند. از زمان نخستین مشاهده نورافشانی در دیودهای نورگسیل مبتنی بر مولکولهای آلی کوچک توسط تانگ [۱] و نورافشانی در دیودهای نورگسیل مبتنی بر پلیمرهای مزدوج توسط باروز [۲] درک عمیق‌تری از مکانیزم حمل جریان در این ادوات بدست آمده است. مواد آلی مورد استفاده در دیودهای نورگسیل معمولا فاقد آلاینده‌های افزوده می‌باشند و در دمای اطاق باربرهای آزاد در آنها وجود ندارد، لذا می‌توان این مواد را از دیدگاه الکتریکی عایق محسوب کرد. پس از آنکه باربرها از الکتروده به داخل لایه آلی تزریق میشوند، مکانیزم حمل حاکم مبتنی بر جهش میان حالت‌های انرژی است. الکترون‌ها و حفره‌ها در لایه‌های حاوی مولکولهای کوچک تنها قادر به جهش از یک مولکول به مولکول همسایه‌اند، در حالیکه حمل باربرها در پلیمرهای حاوی پیوندهای دوگانه مزدوج را می‌توان بر اساس ترکیبی از حرکت باربرها در راستای اربیتال‌های غیرمستقر و جهش میان زنجیره‌های پلیمری توجیه کرد [۳]، [۴]. با اینحال عدم وجود درکی پایه‌ای از برخی از جنبه‌های کارایی دیودهای نورگسیل آلی، مانند ناپایداری درازمدت، کاربرد این ادوات را محدود ساخته است. ناپایداری در دیود نورگسیل از نوع آلی بصورت کاهشی نسبتا کند و یکنواخت (مونوتونیک) در لومینسانس با گذشت زمان مشاهده می‌شود. پایداری بالا در شرایط عملیاتی یک پارامتر کلیدی برای نمایشگرهای مبتنی بر نیمرساناهای آلی بطور خاص و کاربردهای نورافشانی بطور عام است. لذا، پایداری درازمدت محدود یک کاستی عمده در قابلیت اطمینان OLED محسوب میشود [۵]. در OLED پایداری درازمدت محدود مکانیزم عمده حاکم بر کاهش لومینانس قطعه با زمان محسوب میشود. طول عمر OLED بصورت مدت زمانی که در آن لومینانس یا نورافشانی، تحت شرایط عملکرد مداوم، به نصف مقدار اولیه خود کاهش مییابد، تعریف میشود. ناپایداری به نوع مواد مورد استفاده در OLED و آرایش لایه‌ها در قطعه بستگی دارد [۵]. گمان می‌رود وجود ترازهای انرژی تله و ثابت‌های زمانی مربوط

به فرآیند به دام افتادن و آزاد شدن باربرها نقش عمده‌ای در مکانیزم ناپایداری OLED ایفا کند. در دیودهای نورگسیل مبتنی بر لایه‌های آلی NPD و Alq3 وجود یک همبستگی قوی میان کاهش شدت لومینسانس و ایجاد بار مثبت به دام انداخته شده از یکسو و تله‌های خنثی برای الکترون در حد واسط لایه‌های Alq3/NPD از سوی دیگر مطرح شده است [۶]. همچنین، با در نظر گرفتن تغییرات مشخصه ظرفیت خازنی بر حسب ولتاژ (C-V) با زمان و افزایش ولتاژ راه اندازنده با گذشت زمان، ناپایداری در OLED بر اساس مکانیزم انتقال محدود شده توسط ترازهای تله توجیه شده است [۷].

در این ارائه مدلی فیزیکی برای ناپایداری در دیود نورگسیل از نوع آلی، OLED مطرح می‌شود که تغییرات لومینسانس با زمان را بطور کمی و با دقتی بالا توضیح می‌دهد. نرخ تغییر لومینسانس بر اساس یک مکانیزم انتقال همراه با حرکت جهشی میان حالت‌های انرژی تله موسوم به انتقال پاشنده^۱ مدل‌سازی شده است.

۲- مدل فیزیکی

برخلاف نیمرساناهای کریستالی مرسوم، در نیمرساناهای آلی که دارای ساختار مولکولی بی‌شکل می‌باشند، مکانیزم حمل بار مبتنی بر انتقال آزاد از طریق حالت‌های انرژی موجود در نوارهای انرژی پیوسته نیست، بلکه این مکانیزم بر حرکت جهشی میان حالت‌های انرژی موضعی متعدد استوار است. در واقع در جامدات آلی، بعلت حضور پیوندهای ضعیف وان در والس میان مولکول‌ها، الکترون‌ها و حفره‌ها از طریق یک مکانیزم جهشی بین مولکول‌های مجاور حرکت می‌کنند [۸]، [۹]. لذا وجود یک مکانیزم جهشی با وابستگی زمانی کند برای توضیح ناپایداری درازمدت در OLED قابل توجیه است. پیشتر، ناپایداری درازمدت در ترانزیستور اثر میدانی حساس به یون هیدروژن بر اساس یک مکانیزم انتقال جهشی موسوم به انتقال پاشنده که در آن وابستگی زمانی ضریب نفوذ با یک قانون توان بیان می‌شود، با دقت بالایی مدل‌سازی شده است [۱۰]، [۱۱]. فرآیند انتقال پاشنده به مراتب کندتر از فرآیند انتقال در شرایط عملیاتی نرمال قطعه است. در یک جامد بی‌شکل انتقال پاشنده ناشی از حرکت

1. Dispersive

ثابتی از جریان dc کل مربوط به بازترکیب در ناحیه ذاتی است، با توجه به تعریف بازده تابشی می‌توان نشان داد که

$$\Delta R_r(t) = -\Delta R_{nr}(t) \quad (۴)$$

که در آن R_{nr} نرخ بازترکیب غیرتابشی است و تغییرات نرخ بازترکیب با زمان بصورت $\Delta R(t) = R(t) - R(0)$ تعریف می‌شود. با در نظر گرفتن نقش حالت های انرژی تله بعنوان مراکز بازترکیب غیرتابشی، نرخ بازترکیب غیرتابشی متناسب با تغییرات چگالی تله‌ها خواهد بود. لذا با استفاده از معادله (۲) خواهیم داشت:

$$R_{nr}(t) = R_{nr}(0) \exp[-(t/\tau)^\beta] \quad (۵)$$

طبق معادله (۳) لومینسانس متناسب با نرخ بازترکیب تابشی است، بنابراین با در نظر گرفتن معادله (۴) و (۵) رابطه زیر برای تغییرات لومینسانس با زمان بدست می‌آید:

$$\Delta L(t) = \Delta L(\infty) \exp[1 - (t/\tau)^\beta] \quad (۶)$$

با توجه به وابستگی زمانی تغییرات چگالی تله‌ها نرخ بازترکیب غیرتابشی مطابق معادله (۵) زوال نمایی کشیده به نمایش می‌گذارد. لذا مطابق معادله (۶) مشخصه ناپایداری در OLED تغییرات زمانی اولیه نسبتاً سریعی در لومینسانس به نمایش می‌گذارد.

۳- نتایج و بحث

شکل ۱ تطابق میان محاسبات مبتنی بر مدل پیشنهادی و نتایج اندازه‌گیری برای تغییرات لومینسانس با زمان را در یک دیود OLED نوعی نمایش می‌دهد. در شکل ۱ داده های مدل با استفاده از معادله (۶) محاسبه شده‌اند و مقادیر اندازه‌گیری شده لومینسانس از نتایج ارائه شده در مرجع [۱۳] اقتباس شده است. به ازای مقادیر 84 cd/m^2 برای $\Delta L(\infty)$ ، $3/68$ ساعت برای τ و $0/38$ برای β تطابق میان داده‌های اندازه‌گیری شده و داده‌های نظری در شکل ۱ با ضریب همبستگی $0/993$ مشخص می‌شود.

انتقال پاشنده در یک ماده بی‌شکل همچنین وابستگی زمانی ناپایداری ولتاژ آستانه را در ترانزیستورهای اثر میدانی حساس به یون هیدروژن (pH-ISFET) مطابق رابطه‌ای نظیر معادله (۶) بطور کمی توضیح می‌دهد. علت اساسی ناپایداری در pH-ISFET تغییر شیمیایی

جهشی میان حالت های انرژی موضعی منجر به یک زوال زمانی مشخصه در ضریب نفوذ می‌گردد که مطابق رابطه زیر از یک قانون توان پیروی می‌کند [۱۲].

$$D(t) = D_{00}(\omega_0 t)^{\beta-1} \quad (۱)$$

که در آن D ضریب نفوذ موثر (وابسته به زمان) است، D_{00} ضریب نفوذ وابسته به دما را نمایش می‌دهد که از رابطه آرنیوس پیروی میکند، ω_0 بیانگر کثرت وقوع تلاش^۲ برای جهش است و β پارامتری بیان کننده پاشندگی^۳ در گستره $0 < \beta < 1$ است. از دیدگاه فیزیکی وابستگی ضریب نفوذ به زمان ناشی از پاشندگی در فاصله مکانی بین حالت‌های انرژی موضعی، که نزدیکترین همسایه محسوب می‌شوند، و/یا پاشندگی در انرژی این حالت‌های موضعی می‌باشد. تغییرات چگالی تله‌ها، $\Delta N_{ST}(t)$ زوال نمایی کشیده‌ای به نمایش می‌گذارد و با رابطه زیر بیان می‌شود [۱۲].

$$\Delta N_{S/T}(t) = \Delta N_{S/T}(0) \exp[-(t/\tau)^\beta] \quad (۲)$$

که در آن β همان پارامتر مشخصه انتقال پاشنده و τ ثابت زمانی وابسته به آسایش ساختاری عایق است. مقدار نوعی τ در محدوده چندین ساعت می‌باشد.

حالت‌های انرژی تله موجود در لایه گسیل‌کننده OLED بعنوان مراکز بازترکیب غیرتابشی عمل می‌کنند و سبب کاهش لومینسانس قطعه می‌گردند. تغییرات کند لومینسانس با زمان را که در مشخصه ناپایداری OLED مشاهده می‌شود می‌توان به وابستگی زمانی کند فرآیند به دام اندازی و آزادسازی توسط این تله‌ها نسبت داد. برای بیان کمی تغییرات لومینسانس با زمان لازم به توجه است که لومینسانس (شدت روشنایی بر واحد سطح)، $L(t)$ متناسب با نرخ کل گسیل فوتون، dn_{ph}/dt می‌باشد که، به نوبه خود، از رابطه زیر بدست می‌آید:

$$\frac{dn_{ph}}{dt} = R_r \cdot V_a \quad (۳)$$

که در آن R_r نرخ بازترکیب تابشی و V_a حجم ناحیه فعال است. به ازای یک بازده تابشی معین و با فرض آنکه کسر

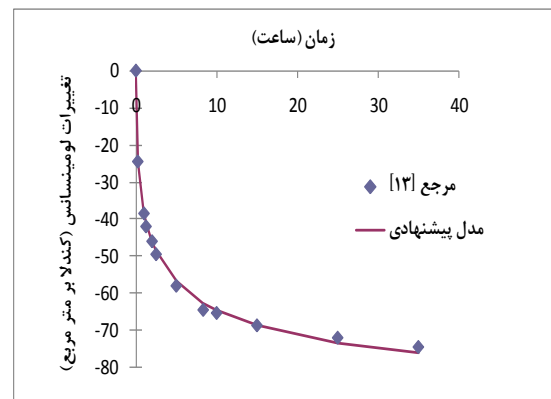
2. (Hopping) attempt frequency
3. Dispersion

تله همراه است بعنوان عامل ناپایداری در OLED توجیه شده است. مدل پیشنهادی برای پدیده ناپایداری در OLED با در نظر گرفتن وابستگی زمانی ضریب نفوذ در انتقال پاشنده تغییرات نرخ زمانی لومینسانس را بطور کمی مدل سازی می کند. با استخراج پارامترهای مدل فیزیکی ناپایداری در OLED بر اساس داده های لومینسانس بر حسب زمان وجود یک تطابق دقیق میان محاسبات مبتنی بر مدل پیشنهادی و نتایج اندازه گیری نمایش داده شده است.

مراجع

- [1] Tang C., and Van Slike S., *Organic electroluminescent diodes*, **Appl. Phys. Lett.** 51 (1987) 913–915.
- [2] Burroughes J., Bradley D., Brown A., Marks R., Mackay K., Friend R., Burns P., Holmes A., *Light-emitting diodes based on conjugated polymers*, **Nature** 347 (1990) 539–541.
- [3] Facchetti A., *π -Conjugated Polymers for Organic Electronics and Photovoltaic Cell Applications*, **Chem. Mater.** 23 (2011) 733–758.
- [4] Dacuna J., Salleo A., *Modeling space-charge-limited currents in organic semiconductors: Extracting trap density and mobility*, **Phys. Rev. B** 84 (2011) 195209.
- [5] Meerheim R., Lüssem B., Leo K., *Efficiency and Stability of p-i-n Type Organic Light Emitting Diodes for Display and Lighting Applications*, **Proceedings of the IEEE** 97 No. 9 (2009) 1606–1626.
- [6] Pinato A., Cester A., Meneghini M., Wrachien N., *Impact of Trapped Charge and Interface Defects on the Degradation of the Optical and Electrical Characteristics in NPD/Alq3 OLEDs*, **IEEE Trans. Electron Devices** 57 No. 1 (2010) 178–187.
- [7] Giebink N., DAndrade B., Weaver M., Brown J., Forrest S., *Direct evidence for degradation of polaron excited states in organic light emitting diodes*, **Journal of Applied Physics** 105 (2009) 124514.
- [8] Bässler H., *Charge transport in disordered organic photoconductors: A monte carlo simulation study*, **Phys. Stat. Sol. B** 175 (1993) 15.
- [9] Arkhipov V., Bässler H., *A model of weak-field quasi-equilibrium hopping transport in disordered materials*, **Phil. Mag. Lett.** 67 (1993) 343.
- [10] Jamasb S., Collins S., Smith R., *A Physical Model for Threshold Voltage Instability in Si_3N_4 -gate H^+ -sensitive FET's (pH ISFET's)*, **IEEE Trans. on Electron Devices** 45 (1998) 1239–1245.
- [11] Jamasb S., Collins S., Smith R., *A Physical Model for Drift in pH ISFETs*, **Sensors and Actuators B: Chemical** 49 (1998) 146–155.
- [12] Kakalios J., Street R., Jackson W., *Stretched-Exponential Relaxation Arising from Dispersive Diffusion of Hydrogen in Amorphous Silicon*, **Phys. Rev. Lett.** 53 (1987) 1037–1040.
- [13] McElvain J., Antoniadis H., Hueschen M., Miller J., Roitman D., Sheats J., Moon R., *Formation and growth of black spots in organic light-emitting diodes*, **J. Appl. Phys.** 80 (1996) 6002.

سطح عایق گیت (برای مثال آبپوشی سطح نیتريد سيليسيم) است [۱۰]. نرخ تغيير شيميايي لايه های عایق گیت در نتیجه تماس با محلول الکترولیتی بر اساس مکانیزم نفوذ پاشنده مدل سازی شده است [۱۱].



شکل ۱. تغییرات لومینسانس بر حسب زمان در OLED

ناپایداری در OLED نیز بعنوان یک تنزل ذاتی در کارایی این قطعه قلمداد میشود که ناشی از فرآیندهای داخلی فیزیکی-شیمیایی است [۱۳]. گمان می رود که ترازهای انرژی تله ناشی از وجود مولکولهای خارجی موجود در داخل لایه گسیل کننده OLED باشند که با تولید حالت های انرژی تله بعنوان مراکز بازترکیب غیرتابشی عمل می کنند [۵]. بدام افتادن باربرها در این ترازهای انرژی منجر به کاهش بازترکیب تابشی و در نتیجه کاهش لومینسانس می گردد. از آنجا که مقدار ثابت زمانی مربوط به فرآیند انتقال پاشنده در معادله (۲) نسبتاً بزرگ است، کاهش لومینسانس که مشخصه ناپایداری درازمدت در OLED است به کندی صورت می گیرد. مطابق معادله (۲) بالاترین میزان تغییر در چگالی حالت های انرژی تله در آغاز فرآیند نفوذ پاشنده رخ می دهد. به این ترتیب، همانطور که در شکل ۱ مشاهده می شود، بیشترین تغییر در نرخ بازترکیب غیرتابشی و در نتیجه لومینسانس به ازای زمان های نسبتاً کوتاه حاصل می شود. بنابراین مدل پیشنهادی تعبیر فیزیکی قابل قبولی از تغییرات نرخ زمانی لومینسانس به دست می دهد.

۴- نتیجه گیری

پدیده ناپایداری در دیود نورگسیل بر اساس یک مدل فیزیکی کمی توضیح داده شد. نفوذ پاشنده باربرها در لایه گسیل کننده نور که با حرکت جهشی میان ترازهای انرژی