多晶硅薄膜阳极微腔有机发光器件及其 简化制备流程的研究*

李 $\Pi^{1,\dagger}$ 孟志国¹ 吴春亚¹ 王 χ^2 郭海 k^2 张 芳³ 熊绍珍¹

(1南开大学光电子所,天津市光电子薄膜器件与技术重点实验室,天津 300071)
 (2香港科技大学电机与电子工程系,香港)
 (3科技部高技术研究发展中心,北京 100044)

摘要:介绍了溶液法金属诱导晶化的 p 型掺杂多晶硅薄膜(p⁺-poly-Si)的制备,并研究了它的电学特性和光学特性.由于 p⁺-MIC poly-Si 薄膜具有比较好的电学特性,且在红光区域具有比较高的反射率与透射率和很小的吸收率,因此我们将它 用作红光 OLED 的阳极.结果显示该器件的最大发光效率为 5.88cd/A,比用 ITO 作阳极制备的 OLED 效率提高了 57%. 这是由于此薄膜对可见光比较高的反射率和阴极铝对可见光的很高反射性能,使之形成了一定 Q 值的微腔效应所至.这样,可以实现发光强度较高、单色饱和性较好的单色显示器件.本研究的意义还在于,由于此 MOLED 的 p 型掺杂 MIC 多晶硅阳极是与其共面型驱动 TFT 有源层、源/漏两极同层材料制备,即是 TFT 漏极的延伸;这样,不仅形成了高性能的 AMOLED 单色显示,而且也大大简化了 AMOLED 工艺流程,从而形成了简化流程的 4-mask AMOLED 基板制备工艺.

关键词:金属诱导多晶硅;有机电致发光器件;微腔;简化流程 PACC:7360F;8140T;8115H 中图分类号:TN321⁺.93 文献标识码:A 文章编号:0253-4177(2008)01-0144-05

1 引言

有机电致发光器件(OLED)由于其主动发光、响应 速度快、功耗低等优点,极有可能成为下一代显示技术 的主流^[1].对于常规 OLED 来说,由于有机材料本身所 固有的宽谱带发射,导致其发光色度差、发光强度低,要 实现高亮度显示势必要增加功耗,这就减少了器件的使 用寿命.因此,改善有机电致发光器件的性能,成为人们 关注并研究的热点.微腔可以重新分配腔内光子的态密 度,使得满足微腔谐振条件的模式得到增强而其他模式 受到抑制.如果将微腔结构引入普通 OLED,由于微腔 效应的存在,使其光谱窄化、发光强度提高,这无疑极大 地改善了器件的色纯度,这在 OLED 显示领域具有重 要的应用价值^[2~4].

普通 OLED 一般是由沉积在玻璃衬底上的透明阳极、有机层以及金属阴极组成的夹心结构. 阴极常采用铝、镁银合金等金属,而阳极一般使用高功函数的 ITO 薄膜^[5],ITO 的功函数为 4.8eV 左右,且光电性能比较好,其可见光透过率一般可达到 85%以上,方块电阻一般为几十欧姆,符合 OLED 阳极的要求.而微腔是由间距在光波长量级的两个平行平面反射镜构成的(即Fabry-Perot,F-P)谐振腔^[6],用来选择所需要的光波长.相对于普通 OLED 而言,微腔式 OLED(micro cavity-OLED,MOLED)就是在沉积 ITO 之前,先在已沉积有低温氧化物 LTO(我们在实验中采用 SiO₂)的玻璃

基板上形成一个由多层介质膜构成的分布布拉格反射 镜(DBR),DBR 与金属阴极构成微腔结构的两个反射 镜,一般情况下 DBR 为一个多周期 DBR 结构.然而, DBR 的制备要求各层材料的厚度及折射率要十分精 确,这对 OLED 显示基板的制备是很不利的;因此,采 用一定反射/透射比和低吸收率的单层薄膜来替代 DBR,如果发光性能有所提高,且制备流程也相对简化, 将无疑是 OLED 显示技术的一个发展方向.

为了提高 OLED 器件与成熟的 Si 集成电路的集成 性,人们正在努力寻找 Si 基导电薄膜做 OLED 器件的 电极材料^[7].溶液法金属诱导晶化技术(S-MIC)因其低 成本、高质量而受到人们的重视^[8].采用 Ni 诱导生成的 大尺寸碟形晶畴的 MIC 多晶硅薄膜,具有制备成本低、 晶化率高、迁移率高和方块电阻低的特点.在研究金属 诱导晶化多晶硅材料(MIC poly-Si)和以之作为有源层 的 poly-Si TFT 的过程中,发现 MIC 多晶硅薄膜材料不 仅具有方块电阻小的良好电学特性,而且在红光波段具 有非常小的吸收率和合适的反射/透射比;MIC 多晶硅 薄膜的这些优良光、电性能表明,它很适合作为 OLED 的阳极材料,从而形成微腔式 OLED.

本文介绍了 MIC poly-Si 薄膜的制备,研究了它的 电学特性和光学特性,并用此薄膜作为阳极材料设计和 制备了红色微腔有机发光器件.其电致发光光谱明显变 窄,发光强度也得到了增强,其品质因数约为 11,适合 于直视型 OLED 显示.运用此项技术,器件性能得到了 提高,制备工艺得到了简化,从而形成了具有 4-mask 简

^{*}国家高技术研究发展计划(批准号:2004AA303570)和国家自然科学基金重点基金(批准号:60437030)资助项目

[†]通信作者.Email:liy@mail.nankai.edu.cn

²⁰⁰⁷⁻⁰⁶⁻²⁴ 收到,2007-08-25 定稿





化流程的多晶硅阳极 MOLED 技术.

2 MIC 多晶硅薄膜的制备及其电学、光 学特性

普通 OLED 与微腔式 OLED 的结构如图 1 (a)与 (b)所示^[9],图中黑色框表示金属阴极铝,而 ITO 与 SiO₂ 之间的黑、白相间部分即为一个多周期 DBR.如果 采用 MIC 多晶硅薄膜作为 OLED 的阳极,就会形成单 周期 DBR 的微腔式 OLED.因此,MIC 多晶硅薄膜的 制备及其电学、光学特性研究是制备高性能微腔式 OLED 的基础.

金属诱导晶化多晶硅(MIC poly-Si)薄膜具有制备 成本低和晶化率高、迁移率高的电学特性[10],它是采用 金属 Ni 作为诱导源,生成大尺寸碟形晶畴的 MIC 多晶 Si 薄膜. 通过对 Si 基薄膜适当掺杂硼(B), 可以得到厚 度为 50nm 左右的 p⁺-MIC poly-Si 薄膜. 其制备过程可 简单描述为:在沉积有 LTO(在实验中采用 SiO₂)过渡 层(100nm)的鹰 2000 玻璃衬底上,用 LPCVD 法在 550℃下沉积 50nm 的非晶硅薄膜,以此作为晶化成多 晶硅的前驱物.将该薄膜浸沾于用氨水调节 PH 值为 8, 氧浓度为10ppm的硝酸镍水溶液中,时间为几十分钟; 然后送入 590℃的管式炉中退火 4h,进行部分金属诱导 晶化.之后,用磷硅玻璃 (PSG)进行晶化过程中残余 Ni 的动态吸除^[11].腐蚀掉吸附有 Ni 的 PSG 层之后,再进 行 B 离子注入,注入剂量为 4×10¹⁵ cm⁻²,注入能量为 20keV.经550℃下B杂质活化1h,即成为掺杂的p⁺-MIC poly-Si 薄膜.图 2(a) 是经过 Secco 溶液腐蚀后的 p⁺-MIC poly-Si 薄膜样品的光学显微照片.从图中可以 清晰地看到 p^+ -MIC poly-Si 薄膜的晶粒呈碟形晶畴, 晶粒尺寸大概为 40~70µm;晶粒相互对撞,从而形成了 对撞晶界.对该薄膜样品中的碟形晶畴进行 Raman 谱 测试,如图 2(b)所示,其 Raman 谱峰值为 518.09,可以 看出它确实属于多晶成份,且半高宽也较窄,表明晶粒 相对较大.这说明通过金属 Ni 诱导晶化使前驱物(非晶 硅薄膜)晶化成了大晶畴的 poly-Si 薄膜.

多晶硅 TFT 迁移率与晶粒尺寸的关系如图 3 所示^[11].由图可见当晶粒尺寸较小时,以晶界散射为主, TFT 迁移率低.只有当晶粒尺寸大到接近微米量级以后,晶粒间界的影响才会逐渐减小,TFT 迁移率也变得



图 2 经 Secco 溶液腐蚀后的多晶硅碟形晶畴的光学显微照片(a)和喇曼 谱(b)

Fig. 2 Micrograph (a) and Raman spectrum (b) of dish-like domain MIC poly-Si after Secco eroded

比较大.因此,对薄膜多晶硅材料的研究,大晶粒技术是 主要的追求目标之一.提高电导率的方法是通过改变晶 化工艺参数,优化 MIC 多晶硅的工艺过程,以力图获得 大晶粒尺寸的 MIC 多晶硅薄膜,我们在实验过程中得 到多晶硅薄膜的碟型晶粒最大尺寸达 400μ m.经过以上 优化晶化工艺参数,我们得到了 p⁺-MIC poly-Si 薄膜 材料的霍耳迁移率(μ _H) 达到 27.1cm²/(V•s) 的优质 材料.因此,大晶粒是保证高电导率,从而获得低方块电 阻的主要技术方向.

大晶粒技术对于薄膜材料的光学性质也是很重要的.由于 MIC 多晶硅薄膜是大晶畴碟形的,是平行于薄膜平面的,因此其晶粒增大,而表面粗糙度却保持不变, 而薄膜晶界却相对变小了.这样,总体而言,随着晶粒尺 寸的变大,其表面粗糙度相对降低,表面会更加平滑.对 大晶畴 MIC 多晶硅薄膜进行 AFM 测试结果表明, 大晶畴 MIC 多晶硅薄膜的 RMS(均方根粗糙度)为







图 4 在玻璃/LTO 过渡层上制备的 MIC 多晶硅的透过率、反射率和吸收 率光谱

Fig. 4 Optical transmission, reflection and absorption of glass/ LTO/MIC poly-Si

2.942nm,已经达到了比较低的程度.这说明,大晶畴 MIC多晶硅薄膜的表面平整度是比较高的.这样,也使 得它具有一定的可见光反射率,而不至于在表面处被散 射掉.

我们又对这种电学性能良好的导电薄膜进行了基本光学性能的测试,这种多晶硅薄膜材料在可见光范围内的透过率、反射率和吸收率光谱如图 4 所示.由图可见:50nm的 MIC poly-Si 薄膜在红、绿、蓝光的波长中心(即λ=620,520 和 450nm)有近似半透半反的光学特性.其中,蓝光的透过率最大,绿光的其次,红光的最小;反射率的情况正好相反,即蓝光的反射率最小,绿光的次之,而红光的最大;尤其在红光波段,薄膜的反射率与透射率都比较稳定,反射/透射比为 0.64/0.34,其吸收率很低.由此可以看出,50nm 的 p⁺-MIC poly-Si 薄膜在红光波段良好的光、电特性表明它非常适合作红光 MOLED 的阳极材料.

3 微腔设计及其发光特性

MIC 多晶硅薄膜良好的光学、电学特性说明它适 合替代 ITO 充当 OLED 的阳极,从而形成 MOLED,如 图 1(c)所示.我们用 ITO 和 p⁺-MIC poly-Si 薄膜分别 作为器件的阳极,制备了两种器件——OLED 和 MOLED,它们都以m_MTDATA:F4_TCNQ(1mol%) 为空穴注入层(HIL),以 NPB 为空穴传导层(HTL), 以 Alq3:DCJTB (1.5wt%)为发光层(EML),以 Alq3 作为电子传输层(ETL),以金属 Al 作为阴极,发射光线 从阳极耦合透过玻璃衬底射出.MOLED 与 OLED 相 比,只是由 p⁺-MIC poly-Si 薄膜替代了 ITO,微腔由 p⁺-MIC poly-Si 薄膜和金属电极兼作反射镜面的 Al 构 成.两种器件的具体结构设计如下:

ITO $rac{g}$ poly_Si(50nm)/ m_MTDATA: F₄_TCNQ (1mol %) (50nm)/ NPB (20nm)/ Alq₃: DCJTB (1.5wt %)(30nm)/Alq₃(20nm)/LiF (1nm)/Al

p⁺-MIC poly-Si 薄膜之所以在红光区域具有比较 合适的反射/透射比,是因为高折射率的多晶硅薄膜与 玻璃衬底上低折射率的过渡层 SiO₂ 形成了单周期的 DBR 结构.在 MOLED 结构中,DBR 是一个至关重要的部分.峰值反射率 R_a 和抑制带宽 B 是描述 DBR 的两个最重要的指标.其峰值反射率 R_a 为^[12]:

$$R_{\rm d} = \left(\frac{n_{\rm o} - \left(\frac{n_{\rm l}}{n_{\rm h}}\right)^{2S} n_{\rm g}}{n_{\rm o} + \left(\frac{n_{\rm l}}{n_{\rm h}}\right)^{2S} n_{\rm g}}\right)^{2}$$
(1)

其中 n_0 , n_g 分别为与 DBR 相邻的有机层和玻璃衬底的折射率; n_h , n_1 分别为 DBR 的高、低折射率;S为 DBR 的周期数.对于 MIC 多晶硅薄膜来说,式中的 S 应取 1.

其抑制带宽 B 为:

$$B \approx \lambda_0 \Delta n / n \tag{2}$$

式中 $\Delta n \approx n_{\rm h} - n_1; n = (n_{\rm h} + n_1)/2; \lambda_0$ 是抑制带宽的 中心波长.

MOLED 产生微腔谐振的条件是有效腔长 *L* 等于 发射峰值半波长的整数倍,即满足下列关系式:

$$m\lambda_{\rm m}/2 = L \tag{3}$$

其中 *m* 是微腔发射模数,为正整数;λ_m 为微腔发射光 谱峰值波长;L 为光在谐振腔内的实际光程长度,其计 算公式如下^[12]:

$$L = \frac{\lambda}{2} \left(\frac{n_{\text{eff}}}{\Delta n} \right) + \sum_{i} n_{i} d_{i} \cos \theta_{i} + \left| \frac{\phi_{\text{M}} \lambda}{4\pi} \right|$$
(4)

其中 λ 为自由空间波长; n_{eff} 为 DBR 的有效折射率; n_i , d_i 分别为谐振腔内各有机层的折射率和厚度; Φ_M 为金属的反射相移. 光学长度第一项为光在 DBR 中的 有效穿透深度, 第二项为谐振腔间各有机层的总光学厚 度, 第三项为光在金属反射镜中的有效穿透深度. 当器 件的金属阴极和 DBR 确定后, 光进入两个反射镜的穿 透深度基本不变. 只要调节各有机层的厚度, 使腔长满 足(3)式, 这时, 满足谐振条件的光因干涉相长将得到增 强, 从阳极和 DBR 一侧耦合而射出. 从理论上讲, 倘若 DBR、金属反射镜的反射率 R_D , R_M 和有效腔长 L 已 知, 再合理地调节发光层到金属反射镜的距离 x, 则可 通过下面的光学方程从相应 OLED 的光谱 $|E_o(\lambda)|^2$ 得 到 MOLED 的光谱 $|E_c(\lambda)|^{2[13]}$:

$$|E_{c}(\lambda)|^{2} =$$

$$\frac{(1-R_{D})\left|1+R_{M}+2|R_{M}|^{0.5}\cos\left|\frac{4\pi x}{\lambda}\right|\right|}{1+R_{M}R_{D}-2(R_{M}R_{D})^{0.5}\cos\left|\frac{4\pi L}{\lambda}\right|} \times |E_{o}(\lambda)|^{2}$$
(5)

根据以上分析,根据计算值 $R_{\rm M} = 0.87$, $R_{\rm D} = 0.61$, x = 51nm,有机层平均折射率取 1.7,运用 MATLAB 仿 真得到了理论曲线.图 5 为器件的 OLED 和 MOLED 的发光光谱,其中以 ITO 为阳极的 OLED 光谱如虚线 所示,点划线是以 MIC 多晶硅为阳极的 MOLED 发光 光谱的 MATLAB 仿真值,而实线为 MOLED 器件的实 测值.从图中可看出 MOLED 的出光光谱与 OLED 相 比,发光光谱强度明显增加,且光谱有所窄化,半宽高由 90nm 减小到 54nm, Q 值由 6.9 增大到 11.5.而且, 仿 真曲线与实测曲线基本上重合,只是实测曲线稍微有所



Fig. 5 EL spectra of the red devices

蓝移,发光强度稍微有所提高.图 6 为该微腔器件的发 光效率与功率效率,从图中可以看出,以 MIC 多晶硅为 阳极的 MOLED 的发光效率和功率效率均有所提高, 最大发光效率提高了 57%.

从以上的实验结果与仿真结果看出,用 MIC 多晶 硅薄膜替代 ITO 作 OLED 的阳极材料,使器件形成了 微腔效应,不仅发光光谱有所窄化,发光强度也有所提 高,发光效率与功率效率也增大了,其 Q 值提高到了~ 11,这正是直视型 OLED 显示器件的最佳品质因数.

4 4-MASK 简 化 流 程 的 多 晶 硅 阳 极 MOLED 技术

上述设计与实验结果表明,用与驱动多晶硅薄膜晶体管(TFT)有源层同材料的多晶硅(poly-Si)薄膜材料作MOLED的阳极,可以制备出性能提高的、品质因数适中、适合于直视型显示的MOLED器件.这项技术与全p型的TFT薄膜集成电路技术相结合,可以形成简化的AMOLED,SOP-AMOLED多晶硅TFT有源基板的制备流程.在此流程中可以不涉及非Si基材料如ITO阳极的制备和相关图形形成、内接触连接等微加工过程,因此提高了各制备工序间的集成性和兼容性,整个多晶硅基板的制备流程从常规的10个左右简化到4个光刻掩膜过程,其结构示意如图7所示.简化后的4-mask制备流程可简单描述如下:



图 6 红光微腔式 OLED 的发光效率与功率效率

Fig.6 Luminance efficiency and power efficiency of the red MOLED





(1)在预先沉积好 LTO 过渡层的玻璃衬底上,制备 MIC 多晶硅,用第一个 mask 光刻形成周边驱动电路 TFT 的有源岛(左),显示驱动 TFT 有源岛(中)和多晶 硅 AMOLED 的像素阳极(右).

(2)沉积栅绝缘层、多晶硅(或金属)栅电极层,用第 二个 mask 形成栅电极和第一层内联引线.对源、漏和 栅进行自对准注入 B 掺杂.

(3)沉积低温氧化硅(LTO)电极隔离层,用第三个 mask 形成 TFT 源漏电极的接触孔.

(4)溅射 Al 电极薄膜,用第 4 个 mask 形成金属电 极连线.

至此,完成了 poly-Si TFT 有源基板相关的制备和 微加工过程,AMOLED 的多晶硅像素阳极只是其 TFT 驱动管漏极的延伸.之后,蒸镀各有机层和金属电极层, 这样就形成了简化流程 4-mask 多晶硅像素阳极的 AMOLED 及 SOP-AMOLED 基板.

5 结论

采用 p 型掺杂的多晶硅薄膜,作为 OLED 的阳极 材料,由于其在红光区域具有比较好的反射/折射比和 很小的吸收率,使它和高反射率的阴极金属 Al 形成了 微腔结构.该器件的光谱有所窄化,发光强度、最大流明 效率均有所增大,其 Q 值增大到约 11,适合直视型显 示.这种 MOLED 器件的多晶硅像素阳极与多晶硅 TFT 有源层为同一层材料,像素阳极即是驱动多晶硅 TFT 漏极的延伸.采用该项技术,制备的有源驱动基板 可去掉 ITO 的溅射成膜过程和像素电极的加工过程, 以及 ITO 与金属电极的接触孔的加工过程.形成 4-mask简化流程的 AMOLED 基板制备工艺,有望降低 生产成本.

参考文献

- Xie Y Q, Guo J H, Peng J B, et al. High-efficiency red-phosphorescent 6CPt electroluminescence. Acta Physica Sinica, 2005, 54
 (8):3424(in Chinese)[谢玉卿,郭建华,彭俊彪,等. 掺咔唑取代卟 啉铂的高效聚合物红色磷光发射.物理学报,2005,54(8):3424]
- [2] Lemmer U, Henning R, Guss W, et al. Microcavity affects in a spin-coated polymer two-layer system. Appl Phys Lett, 1995, 66: 1301

- [3] Tokito S, Noda K, Taga Y. Strongly directed single mode emission from organic electroluminescent diode with a microcavity. Appl Phys Lett, 1996, 68:2633
- [4] Nakayama T, Itoh Y, Kakuta A. Organic photo- and electroluminescent devices with double mirrors. Appl Phys Lett, 1993, 63, 594
- [5] Kido J, Kimura M, Nagai K. Multilayer white light-emitting organic electroluminescent device. Science, 1995, 267:1332
- [6] Fisher T A, Lidzey D G, Pate M A, et al. Electroluminescence from a conjugated polymer microcavity structure. Appl Phys Lett,1995,67(10),1355
- [7] Kim H H, Miller T M, Westerwick E H, et al. Silicon compatible organic light emitting diode. J Lightwave Technol, 1994, 12:2107
- [8] Zhuo M, Xu Q X. Optimizing structure and processes of nickel induced lateral crystallization. Chinese Journal of Semiconductors, 2002,23(11);1218
- [9] Tokito S, Tsutsui T, Taha Y. Microcavity organic light emitting for

strongly directed pure red.green.and blue emissions. J Appl Phys, 1999.86(5):2407

- [10] Qin Ming, Poon V M C. Ni-induced lateral crystallization of amorphous silicon thin films and its characterization. Chinese Journal of Semiconductors, 2001, 22:57(in Chinese)[秦明, Poon V M C.非晶硅薄膜的镍诱导横向晶化工艺及其特性.半导体学 报,2001,22:57]
- [11] Kim J C, Choi J H, Kim S S, et al. Stable polycrystalline silicon TFT with MICC. IEEE Electron Device Lett, 2004, 25(4):182
- [12] Tang Jinfa, Zheng Quan. Application film optics. Shanghai: Shanghai Scientific & Technical Publishers, 1984; 88(in Chinese)
 [唐晋发,郑权.应用薄膜光学.上海:上海科学技术出版社, 1984: 88]
- [13] Doda B A, Rothberg L J, Miller T M, et al. Physics and applications of organic microcavity light emitting diodes. J Appl Phys, 1996,80(12):6954

A Poly-Crystalline Si Anode Microcavity Organic Light Emitting Device and Its Simplified Preparation Process Flow*

Li Yang^{1, \dagger}, Meng Zhiguo¹, Wu Chunya¹, Man Wong², Hoi Sing Kwok², Zhang Fang³, and Xiong Shaozhen¹

(1 Institute of Photo-Electronics, Nankai University, Tianjin Key Laboratory of Photo-Electronic Thin Film Devices and

Technology, Tianjin 300071, China)

(2 Department of Electronic and Computer Engineering, The Hong Kong University of Science and Technology, Hong Kong, China) (3 The Center of R & D for High Technology, MOS, Beijing 100044, China)

Abstract: The preparation of Boron-doped solution-based metal induced crystallized poly-Si is introduced and its electrical and optical characteristics are studied. P^+ -MIC poly-Si thin film has good electrical characteristics and optical characteristics including high reflection and transmission and very low absorption within red light region. As a result, we used it as an OLED electrode. The maximum luminance efficiency of the device with the poly-Si anode is 5.88cd/A,57% higher than that of the OLED with the ITO anode. Systemization of the relatively high reflectivity P^+ -poly-Si anode with the very high reflectivity Al cathode forms a micro-cavity structure with a certain Q to improve the efficiency of OLED fabricated on it. So, a homochromy display device with high EL intensity and high saturation performance can be realized. The significance of this study and design rests with: Using P^+ -poly-Si, which is the same material as the active layer and source and drain electrodes of the coplanar drive TFT, as the anode of MOLED in place of ITO, which not only develops high performance MOLED, but also greatly simplifies the preparation process flow. Consequently, a simple 4-mask AMOLED panel preparation process is formed.

Key words: metal induced crystallization poly-crystalline Si film; organic light emitting display; microcavity; simple flow PACC: 7360F; 8140T; 8115H Article ID: 0253-4177(2008)01-0144-05

^{*} Project supported by the National High Technology Research and Development Program of China (No. 2004AA303570) and the National Natural Science Foundation of China (No. 60437030)

[†] Corresponding author. Email: liy@mail. nankai.edu. cn, insidesun@mail. 163.com Received 24 June 2007, revised manuscript received 25 August 2007