

引用格式: LIN Wen-yan, CHEN Ning, WU Zhi-jun, *et al.* Preparation of Highly-efficient Tandem OLED Based on B_3 PyMPM : Cs[J]. *Acta Photonica Sinica*, 2020, 49(1):0123003

林雯嫣,陈宁,吴志军,等. 基于 B_3 PyMPM : Cs 高效叠层 OLED 器件的制备[J].光子学报,2020,49(1):0123003

基于 B_3 PyMPM : Cs 高效叠层 OLED 器件的制备

林雯嫣,陈宁,吴志军,翟云

(华侨大学 信息科学与工程学院, 福建 厦门 361021)

摘 要:以 B_3 PyMPM : Cs/Al /HAT-CN 作为电荷生成单元制备高效叠层绿色磷光有机电致发光器件,叠层器件的最大电流效率和最大流明效率分别为 172.2 cd/A 和 111.0 lm/W,在 5 mA/cm² 电流密度下,叠层器件的电压和亮度分别为传统器件的 2.04 倍和 2.84 倍.为了探究叠层器件性能优于传统器件的原因,研究了电荷生成单元内的电荷产生和注入过程,以及薄层铝对电子注入特性和电荷生成单元稳定性的影响.实验结果表明,电荷能够有效地在电荷生成单元内产生并顺利注入电子传输层中, B_3 PyMPM : Cs 和 HAT-CN 间 Al 薄层的插入能够进一步提高电子注入效率及器件结构的稳定性.

关键词:有机电致发光器件;叠层;效率;电子注入;稳定性

中图分类号:TN383+.1;TN312+.8 文献标识码:A doi:10.3788/gzxb20204901.0123003

Preparation of Highly-efficient Tandem OLED Based on B_3 PyMPM : Cs

LIN Wen-yan, CHEN Ning, WU Zhi-jun, ZHAI Yun

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

Abstract: Charge generation unit consisting of B_3 PyMPM : Cs/Al/HAT-CN was employed to fabricate a highly-efficient tandem green phosphorescent organic light-emitting device. The maximum current efficiency and the maximum luminous efficiency of tandem organic light-emitting device are as high as 172.2 cd/A and 111.0 lm/W, respectively. At the given current density of 5 mA/cm², the voltage and luminance of the tandem device are 2.04 times and 2.84 times those of single-unit device. In order to explore the reason why the performance of tandem device is better than the single device, the charge generation and injection processes in charge generation unit, and the effect of ultrathin Al layer on electron injection capability and the stability of charge generation unit systemically were studied. Experimental results show that the charges can be efficiently generated in the charge generation unit and smoothly injected into the electron transport layer. The insertion of the thin layer of aluminum between B_3 PyMPM : Cs and HAT-CN can increase both the electron injection and the device stability.

Key words: Organic light-emitting device; Tandem; Efficiency; Electron injection; Stability

OCIS Codes: 230.2090;230.3670;310.6860

0 引言

近年来,叠层结构的有机电致发光器件(Organic Light-emitting Diodes, OLED)由于在低驱动电流密度下能够保持高亮度和高效率的优势^[1],受到了国内外研究者广泛关注和重视.通常,叠层器件通过电荷生成单元(Charge Generation Unit, CGU)将两个或者多个发光单元串联起来,CGU 内产生的空穴和电子能够传输到相邻的发光单元,与分别来自阴极和阳极的电子和空穴复合形成激子,使各个发光单元能够同时发光.

基金项目:国家自然科学基金(Nos.61605049, 61575070, 11674111)

第一作者:林雯嫣(1992-),女,硕士研究生,主要研究方向为有机电致发光器件. Email: linwy71@126.com

通讯作者:翟云(1979-),男,讲师,硕士,主要研究方向为有机电致发光器件. Email: yunzhai1979@126.com

收稿日期:2019-06-25;录用日期:2019-08-26

<http://www.photon.ac.cn>

基于电子注入层/电子受体结构的 CGU 具有高效的电荷产生效率、良好的电子注入特性及光学透过率^[2].常见的电子受体包括金属氧化物,如 WO_3 、 V_2O_5 、 MoO_3 等过渡金属氧化物及有机物 1, 4, 5, 8, 9, 11-Hexaazatriphenylene-hexacarbonitrile(HAT-CN);电子注入层包括金属化合物薄层/铝(如 LiF/Al , Liq/Al)和 N 掺杂有机物/铝(掺杂客体如 Li , CsN_3 , Cs_2CO_3 , Mg , Cs 等)两种^[2-6].电子注入层及电子受体的选择直接决定了叠层器件的性能.2015 年, SUN 等^[7]采用铯(Cs)作为 N 掺杂剂掺杂在 4, 4, 4-tris(N-carbazolyl)triphenylamine(Bphen)中,作为 CGU 的电子注入层,HAT-CN 作为 CGU 的电子受体,制备出了高效的绿色磷光叠层器件.相比于 Bphen, bis-4, 6-(3, 5-di-3-pyridylphenyl)-2-methylpyrimidine (B_3PyMPM)最低未占有分子轨道(Lowest Unoccupied Molecular Orbital,LUMO)能级较低,更有利于电子的注入^[8],但是 B_3PyMPM 的电导率比 Bphen 低好几个数量级^[9],电子会在 B_3PyMPM /阴极界面上堆积,阻碍电子的注入和传输,将 Cs 掺杂在 B_3PyMPM 中可以提高电导率,降低界面处的电子注入势垒.迄今为止,未见 CGU 中使用 $\text{B}_3\text{PyMPM}:\text{Cs}$ 的报道,故本文以 $\text{B}_3\text{PyMPM}:\text{Cs}/\text{Al}/\text{HAT-CN}$ 作为 CGU 制备高效叠层绿色磷光器件,并研究了 CGU 内电荷产生和注入过程、薄层铝(Al)对电子注入特性以及对 CGU 稳定性的影响.

1 实验

将镀有铟锡氧化物(Indium-tin-oxide,ITO)的基片依次放入装有 decon90、WIN188 清洗溶液、去离子水、酒精的烧杯中,进行一系列的超声清洗,然后用干燥的氮气吹干,放入烘箱中烘干后取出,放入等离子处理机中,对基片的 ITO 表面进行氧等离子处理,最后打开 LN-162SA 型多源有机气相沉积系统的蒸镀腔,将处理好的基片置于托盘的固定位置上(ITO 面朝下放置),再将托盘置于真空蒸镀腔内,关上腔门并抽真空.当真空保持 $5.0 \times 10^{-5} \text{ Pa}$ 以下时,根据实验器件结构,以热蒸镀的方式依次生长基片下方有机源坩锅中不同的材料,最后通过加热金属源蒸发舟上的材料,将阴极蒸镀到基片上.其中,HAT-CN 作为电子受体材料和空穴注入层(Hole-injection Layer, HIL)材料, B_3PyMPM 和 BPhen 作为电子传输层(Electron-transporting Layer, ETL)和空穴阻挡层(Hole-blocking Layer, HBL)材料,1, 1-bis-(4-bis(4-methyl-phenyl)-amino-phenyl)-Cyclohexane (TAPC)作为空穴传输层材料(Hole-transporting Layer, HTL),4, 4, 4-tris(N-carbazolyl)triphenylamine (TCTA)作为绿色磷光材料(acetylacetonato)bis(2-phenylpyridine) iridium(III) ($\text{Ir}(\text{ppy})_2(\text{acac})$)的主体,Tris(8-hydroxy-quinolino) aluminium (Alq_3)作为黄色荧光材料5, 6, 11, 12-Tetraph enylnaphthacene (Rubrene)的主体.放置基片的底座缓慢在蒸镀腔内匀速旋转,以使薄膜在基片上能均匀生长.生长速率的快慢通过加热温度的高低决定.薄膜的生长速率和厚度通过 INFICON SQC310 石英晶体膜厚监控仪来监测.未掺杂有机物的生长速率为 0.03 nm/s ,氟化锂(LiF)的生长速率为 0.005 nm/s ,阴极 Al 的生长速率为 1 nm/s .掺杂通过双源共蒸实现,其比例为两种蒸镀材料的速率比. $\text{B}_3\text{PyMPM}:\text{Cs}$ 掺杂层中主体和客体的速率分别为 0.04 nm/s 和 0.006 nm/s , $\text{TCTA}:\text{Ir}(\text{ppy})_2\text{acac}$ 掺杂层中主体和客体的速率分别为 0.04 nm/s 和 0.004 nm/s .

实验的电压、电流及亮度均由 Keithley 2400 程控电源及 LS-110 亮度计组成的测试系统进行测量,电致发光光谱由 PR655 光谱仪和 Keithley 2450 程控电源组成的系统测量.一个 OLED 器件的有效发光区有四个,为 ITO 层、有机层与阴极层重叠部分,每个的面积是 $3 \text{ mm} \times 3 \text{ mm}$;阴极有四个,每个

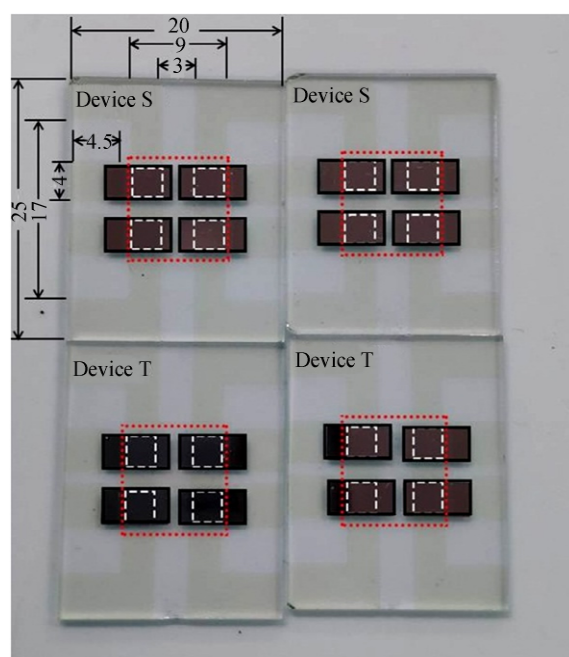


图1 实验室所制备器件
Fig.1 Devices prepared in laboratory

面积 6.5 mm×3 mm;有机层面积为 11 mm×10 mm.图 1 为实验制备出的器件,图中所标尺寸为 ITO 尺寸,单位为 mm,白色虚线方框围成区域为发光区域,红色点状方框围成区域为有机层,黑色实线方框围成区域为阴极区.为了测量微小面积,LS110 和 PR655 都配备了型号分别是 NO.110 和 SL-1X 的近摄镜.所有测量都是在充满氮气的手套箱中进行.

2 实验结果及分析

2.1 叠层器件与传统器件对比实验

叠层器件 Device T 与传统器件 Device S 的结构如图 2 所示,图 3 为 Device T 与 Device S 的特性曲线,表 1 为 Device T 和 Device S 性能对比.可以看出,在 5 mA/cm² 电流密度下,传统器件 Device S 的驱动电压和亮度分别为 3.84 V 和 2 469 cd/m²,而叠层器件 Device T 的驱动电压和亮度分别为 7.83 V 和 7 036 cd/m²,分别为传统器件的 2.04 倍和 2.84 倍,说明电荷能够有效地在 CGU 内产生,电子能顺利注入靠近 ITO 的发光单元的电子传输层^[10].叠层器件 Device T 的最大电流效率达 172.2 cd/A,为传统器件的 2.18 倍,在 1 000 cd/m² 亮度下,电流效率仍可达 165.4 cd/A,效率滚降仅为 3.9%.电流效率的计算公式为^[11]

$$\eta_{CE} = \frac{L}{J} \quad (1)$$

式中, η_{CE} 为电流效率, L 为亮度, J 为电流密度.相同电流密度下,Device T 的流明效率仍旧高于 Device S,说明叠层器件 Device T 中 CGU 可产生等量的电子空穴,并注入到上下两个发光层中,使发光层内载流子更平衡,每个发光单元仅受到来自附近电极的等离子体淬灭,从而减轻了等离子体淬灭效应^[12].流明效率为器件在观察者方向上的发光功率与驱动器件所需电功率的比值,公式为

$$\eta_{LE} = \frac{L_p}{UI} \quad (2)$$

式中, η_{LE} 为流明效率, L_p 为发光功率, U 为电压, I 为电流.在实际器件的效率测量上,把器件近似看做朗伯发光体的前提下,流明效率的计算公式为^[13]

$$\eta_{LE} = \frac{\pi L}{JU} = \frac{\pi \eta_{CE}}{U} \quad (3)$$

叠层器件 Device T 的性能比其他文献报道的绿色磷光叠层器件性能更优异,表 2 列举了 Device T 与其他文献报道的器件性能参数对比^[14-17],对比器件的测试条件与本文所制备叠层器件近乎相同.从表中可知,Device T 的开启电压低于对比器件,最大电流效率、流明效率、外量子效率均优于对比器件,说明所制备的叠层器件性能优异,各发光单元的发光层内的电子和空穴能够更顺利地复合发光.

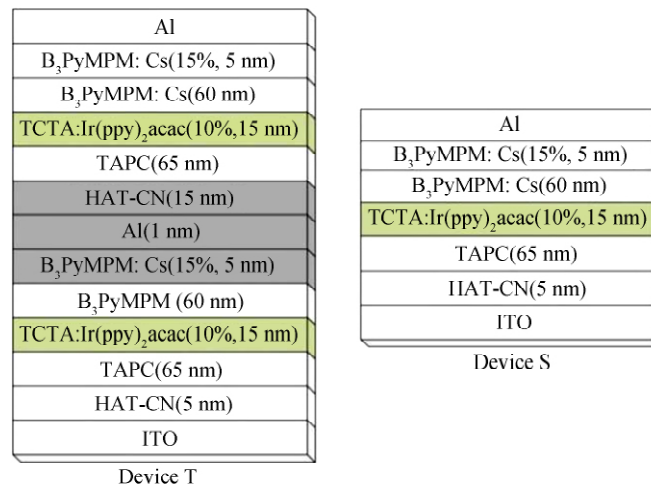


图 2 器件 Device T 和 Device S 结构

Fig.2 Configurations of Device T and Device S

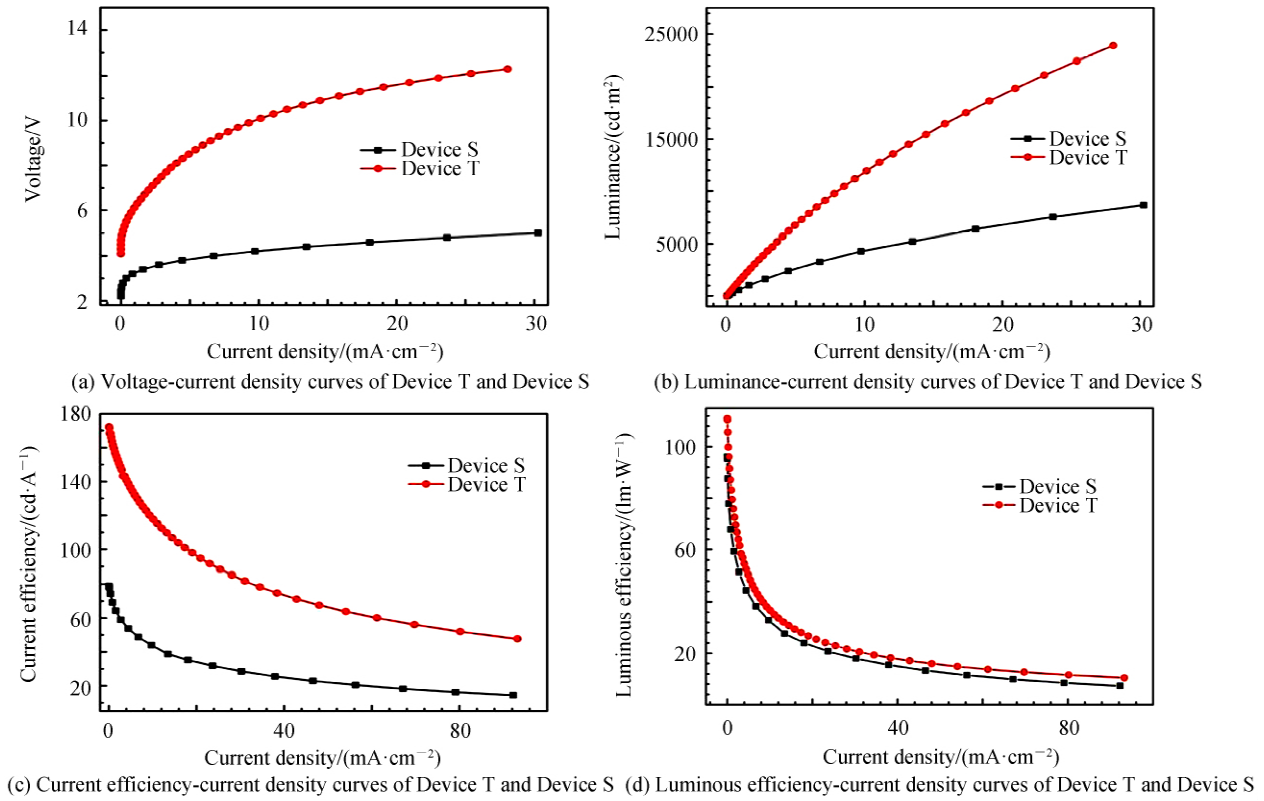


图3 器件 Device T 和 Device S 特性曲线
Fig.3 Characteristic curves of Device T and Device S

表1 器件 Device T 和 Device S 性能对比
Table 1 The key performances of Device T and Device S

Device	Turn-on voltage/V	Voltage	Luminance	Current efficiency		Luminous efficiency		External quantum efficiency /%
		/V	/(cd · m ⁻²)	/(cd · A ⁻¹)	/(lm · W ⁻¹)			
		J_5	J_5	Max	J_5	Max	J_5	Max
S	2.23	3.85	2607	78.93	52.56	96.06	42.94	20.08
T	4.23	8.53	6 808	172.18	136.19	111.03	50.15	42.08

表2 叠层绿色磷光器件性能对比
Table 2 The key performances of the state-of-the-art tandem green phosphorescent OLED

Device	Turn-on voltage/V	Current efficiency				Luminous efficiency				External quantum efficiency/%		
		Max	η_{100}	η_{1000}	η_{5000}	Max	η_{100}	η_{1000}	η_{5000}	Max	η_{1000}	η_{5000}
Device T	4.2	172.2	171.1	165.4	143.1	111.0	110.5	90.2	57.5	42.1	40.4	35.0
Ref.[12]	11.9	-	47.5	92.9	94.0	-	10.6	19.3	18.6	25.2	25.5	
Ref.[13]		71.9	39.2	71.7	60.8	18.7	12.0	18.7	14.4			
Ref.[14]	4.9	149.1	-	146.3	-	38.5	-	37.8	-	38.5	37.8	
Ref.[15]		135.7	-	-	-	59.9	-	-	-	36.9		

图4为 Device T 不同角度下的归一化光谱.由图可知,光谱的峰值基本不随观测角度的变化而变化,说明叠层器件的高效源于两个发光单元发光层的同时发光,而非源于微腔效应^[18].

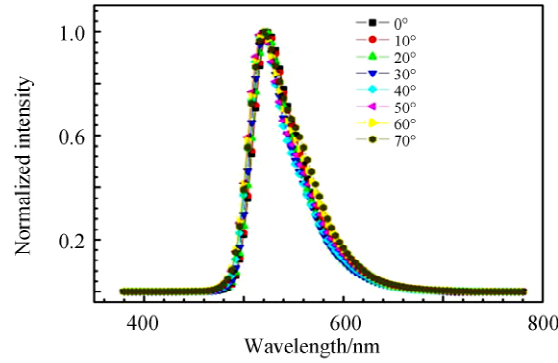
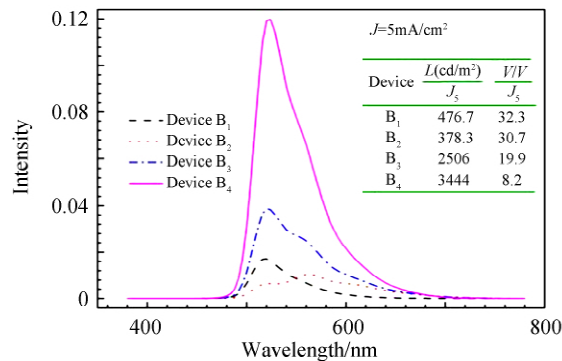


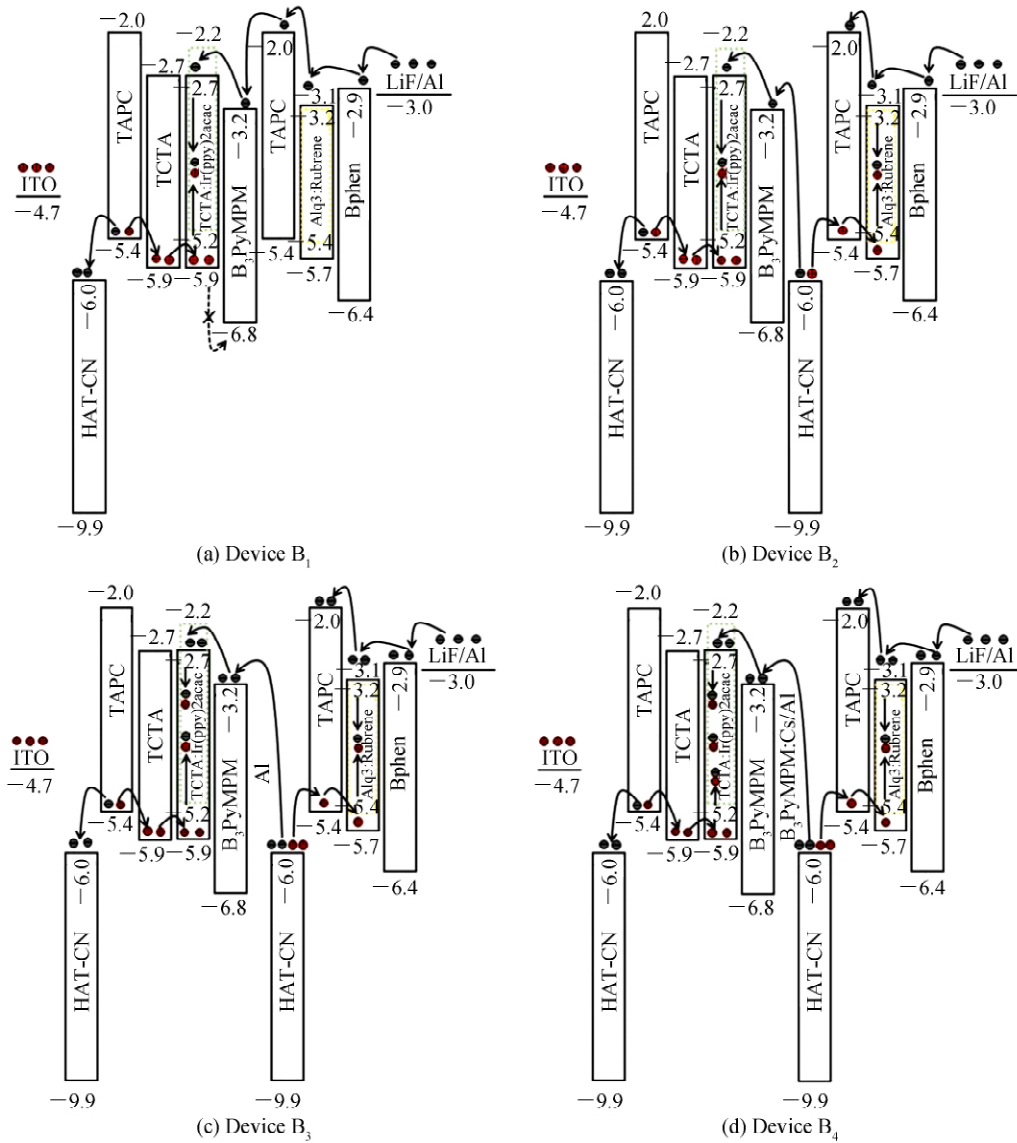
图4 Device T 不同角度下的归一化光谱

Fig.4 Normalized spectra of Device T at different viewing angles

2.2 CGU 机理分析

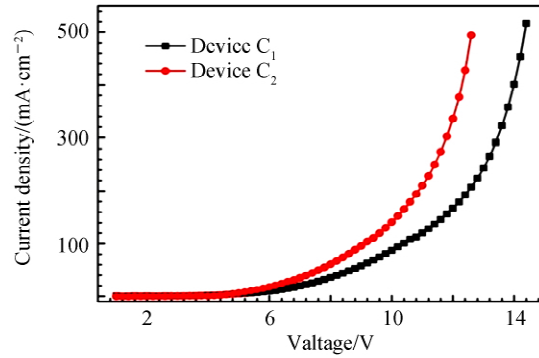
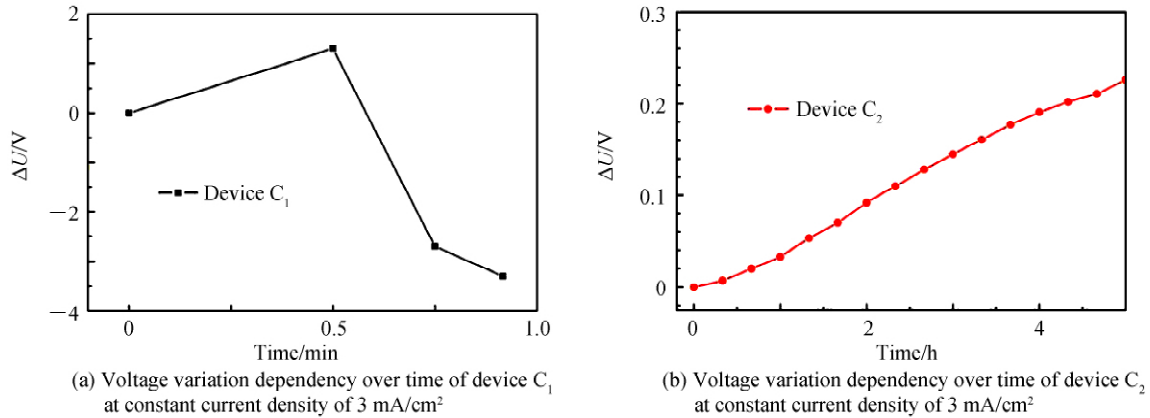
为了探究叠层器件性能优于传统器件的原因,进行了CGU内电荷产生与注入过程实验,制备了结构为ITO/HAT-CN(5 nm)/TAPC(60 nm)/TCTA(5 nm)/EL-G/ B_3 PyMPM(60 nm)/X/TAPC(60 nm)/EL-Y/Bphen(60 nm)/LiF(1 nm)/Al的双色器件,其中,EL-G表示TCTA:Ir(ppy)₂acac(10%, 15 nm),EL-Y表示Alq₃:Rubrene(5%, 20 nm),X分别为 B_3 PyMPM(5 nm)、 B_3 PyMPM(5 nm)/HAT-CN(15 nm)、 B_3 PyMPM:Cs(15%, 5 nm)/HAT-CN(15 nm)和 B_3 PyMPM:Cs(15%, 5 nm)/Al(1 nm)/HAT-CN(15 nm),分别用器件Device B₁₋₄表示.图5为器件Device B₁₋₄在5 mA/cm²电流密度下的光谱.由图可知,Device B₁只有一个来自Ir(ppy)₂acac的发光峰,说明电子能传输到Ir(ppy)₂acac发光层中,而由于 B_3 PyMPM对空穴的阻挡,空穴无法传输到Alq₃:Rubrene发光层中^[19];Device B₂可观测到来自Ir(ppy)₂acac和Rubrene两个发光峰,说明在 B_3 PyMPM和TAPC间插入HAT-CN后,空穴能够产生并注入到Alq₃:Rubrene层,这是由于HAT-CN的LUMO能级(-6.0 eV)低于TAPC的最高占有分子轨道(Highest Occupied Molecular Orbital, HOMO)能级(-5.4 eV),使电子能够从TAPC的HOMO能级跃迁至HAT-CN未占有的LUMO能级,在TAPC的HOMO能级和HAT-CN的LUMO能级中分别产生空穴与电子^[20],使空穴能够传输到Alq₃:Rubrene发光层中,因此,器件可观测到来自Rubrene的发光峰.然而,在5 mA/cm²电流密度下,Device B₂的亮度低于Device B₁,驱动电压高于Device B₁,这是由于 B_3 PyMPM与HAT-CN界面间存在相差2.8 eV的巨大电子注入势垒,产生的电子很难传输到Ir(ppy)₂acac发光层中;相似地,Device B₃也可观测到来自Ir(ppy)₂acac和Rubrene的发光峰,然而Device B₃的亮度高于Device B₂,驱动电压低于Device B₂,说明将N掺杂剂Cs掺杂在 B_3 PyMPM中极大地降低了电子的注入势垒^[21];Device B₄的发光强度与Device B₃相比又有进一步增强,而驱动电压比Device B₃更低,这是由于 B_3 PyMPM:Cs和HAT-CN之间Al薄层的插入,使电子能够更加顺利地由HAT-CN注入到 B_3 PyMPM中.图6为Device B₁₋₄载流子传输图.

图5 器件 Device B₁₋₄ 在 5 mA/cm² 电流密度下光谱Fig.5 Electroluminescent spectra of Devices B₁₋₄ at current density of 5 mA/cm²

图6 器件 Device B₁₋₄ 载流子传输图Fig.6 Carriers transfer diagram of Device B₁₋₄

为了研究 CGU 薄层 Al 对电子注入特性的影响,设计结构:ITO/Bphen(100 nm)/B₃PyMPM:Cs(15%,15 nm)/Al(C nm)/HAT-CN(15 nm)/NPB(70 nm)/Al,其中 C 值分别为 0 nm、1 nm,用器件 Device C₁和器件 Device C₂表示.由于 NPB/Al 和 Bphen/ITO 界面间巨大的电子和空穴注入势垒^[22-23],外部的载流子无法进入到 Device C₁和 Device C₂中,实验所观测到的电流主要来自 CGU 中产生的载流子^[24-25].图 7 为 Device C₁和 Device C₂的电流密度-电压曲线.由图可知,相同电压下,Device C₂的电流密度明显高于 Device C₁,这是由于在蒸镀过程中,部分的 Cs 与腔室内残余的氧气反应生成铯的氧化物,而 Device C₂器件内的铯氧化物能够进一步与 Al 反应生成 Cs^[26],进一步提高了 Cs 掺杂 B₃PyMPM 层的电子电导率,有助于改善 CGU 中的电子注入^[27].

为了进一步研究薄层 Al 对 CGU 的影响,利用 Device C₁和 Device C₂进行 CGU 稳定性研究.图 8 为 Device C₁和 Device C₂在 3 mA/cm² 电流密度下电压随时间变化曲线.由图可知,1 min 内,器件 Device C₁发生剧烈变化,而器件 Device C₂在 5 h 内仅变化 0.22 V,说明 Device C₂比 Device C₁更加稳定,Device C₂内 Al 的存在使 Cs 无法向 HAT-CN 扩散,提高了 CGU 的稳定性.

图7 器件 Device C₁ 和 Device C₂ 电流密度-电压曲线Fig.7 Current density-voltage curves of Devices C₁ and Device C₂图8 器件 Device C₁ 和 Device C₂ 在 3 mA/cm^2 电流密度下电压随时间变化曲线Fig.8 Voltage variation dependency over time of Device C₁ and Device C₂ at constant current density of 3 mA/cm^2

3 结论

本文利用 $B_3PyMPM : Cs/Al/HAT-CN$ 作为 CGU 制备高效叠层绿色磷光器件,叠层器件的效率高达 172.2 cd/A 和 111.0 lm/W ,外量子效率高达 42.08% .在 1000 cd/m^2 亮度下,电流效率仍可达到 165.4 cd/A ,外量子效率仍可达 40.4% .在 5 mA/cm^2 电流密度下,叠层器件的电压和亮度分别为传统器件的 2.04 倍和 2.84 倍.本文所制备叠层器件性能优异,开启电压、最大效率等特性均高于其他文献报道的叠层绿色磷光器件.详细研究了连接叠层器件发光单元的 CGU 内电荷产生和注入过程,以及薄层 Al 对电子注入和 CGU 稳定性的影响,实验结果表明,CGU 内能够有效地产生电子和空穴并注入到相邻发光单元,Cs 的存在能够降低电子的注入势垒,薄层 Al 的存在不仅能够提高电子的注入能力,还能提高 CGU 的稳定性.

参考文献

- [1] SHI CH, SUN N, WU Z B, *et al.* High performance hybrid tandem white organic light-emitting diodes by using a novel intermediate connector[J]. *Journal of Materials Chemistry C*, 2018, **6**(4): 767-772.
- [2] ZHOU D Y, ZU F S, ZHANG Y J, *et al.* Highly stable and efficient tandem organic light-emitting devices with intermediate connectors using lithium amide as n-type dopant[J]. *Applied Physics Letters*, 2014, **105**(8):083301.
- [3] CHIBA T, PU Y J, MIYAZAKI R, *et al.* Ultra-high efficiency by multiple emission from stacked organic light-emitting devices[J]. *Organic Electronics*, 2011, **12**(4):710-715.
- [4] LIU J, WANG J, HUANG S, *et al.* A highly efficient, transparent and stable charge generation unit based on a p-doped monolayer[J]. *Organic Electronics*, 2013, **14**(5):1337-1343.
- [5] FUNG M K, LI Y Q, LIAO L S. Tandem organic light-emitting diodes[J]. *Advanced Materials*, 2016, **28**(47): 10381-10408.
- [6] YU Y, WU Z, YU Y, *et al.* Highly-efficient tandem organic light-emitting device employing bis-4, 6-(3, 5-di-3-pyridylphenyl)-2-methylpyrimidine doped with cesium azide in charge generation unit[J]. *Organic Electronics*, 2018, **52**: 329-334.
- [7] SUN H, GUO Q, YANG D, *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 Photonics*, 2015, **2**(2): 271-279.
- [8] LEE S, LEE J H, LEE J H, *et al.* The mechanism of charge generation in charge-generation units composed of p-doped hole-transporting layer/HATCN/n-doped electron-transporting layers [J]. *Advanced Functional Materials*, 2012, **22**(4): 855-860.
- [9] 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]. *Organic Electronics*, 2009, **10**(4): 686-691.
- [10] DING L, TANG X, XU M F, *et al.* Lithium hydride doped intermediate connector for high-efficiency and long-term stable tandem organic light-emitting diodes [J]. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 2014, **6**(20): 18228-18232.
- [11] XIE Wen-fa. Novel white organic light-emitting devices [D]. Changchun: Jilin University, 2004.
谢文法. 新结构白光有机电致发光器件 [D]. 长春: 吉林大学, 2004.
- [12] WRZESNIEWSKI E, EOM S H, CAO W, *et al.* Enhancing light extraction in top-emitting organic light-emitting devices using molded transparent polymer microlens arrays [J]. *Small*, 2012, **8**(17): 2647-2651.
- [13] CHENG Gang. Study on white organic light-emitting devices [D]. Changchun: Jilin University, 2004.
程刚. 有机白色电致发光器件的研究 [D]. 长春: 吉林大学, 2004.
- [14] CHIBA T, PU Y J, KIDO J. Solution-processed white phosphorescent tandem organic light-emitting devices [J]. *Advanced Materials*, 2015, **27**(32): 4681-4687.
- [15] WU Y, SUN Y, QIN H, *et al.* Buffer-modified n/p-type and p/n-type planar organic heterojunctions as charge generation layers for high performance tandem organic light-emitting diodes [J]. *Synthetic Metals*, 2017, **228**: 45-51.
- [16] GUO Q, YANG D, CHEN J, *et al.* C70/C70: pentacene/pentacene organic heterojunction as the connecting layer for high performance tandem organic light-emitting diodes: Mechanism investigation of electron injection and transport [J]. *Journal of Applied Physics*, 2017, **121**(11): 115502.
- [17] XU T, ZHOU J G, HUANG C C, *et al.* Highly simplified tandem organic light-emitting devices incorporating a green phosphorescence ultrathin emitter within a novel interface exciplex for high efficiency [J]. *ACS applied materials & interfaces*, 2017, **9**(12): 10955-10962.
- [18] LIU S, LIU J, WEN X, *et al.* Angle-stable RGBW top-emitting organic light-emitting devices with Ag/Ge/Ag cathode [J]. *Optics Letters*, 2013, **38**(10): 1742-1744.
- [19] SUN J W, LEE J H, MOON C K, *et al.* A fluorescent organic light-emitting diode with 30% external quantum efficiency [J]. *Advanced Materials*, 2014, **26**(32): 5684-5688.
- [20] LIAO L S, SLUSAREK W K, HATWAR T K, *et al.* Tandem organic light-emitting diode using hexaazatriphenylene hexacarbonitrile in the intermediate connector [J]. *Advanced Materials*, 2008, **20**(2): 324-329.
- [21] XIE G, FEHSE K, LEO K, *et al.* Novel PINP top-emitting organic light-emitting diodes with enhanced efficiency and stability [J]. *Organic Electronics*, 2013, **14**(9): 2331-2340.
- [22] WANG X, YU J, ZHAO J, *et al.* Comparison of electron transporting layer in white OLED with a double emissive layer structure [J]. *Displays*, 2012, **33**(4-5): 191-194.
- [23] JEON W S, PARK J S, LI L, *et al.* High current conduction with high mobility by non-radiative charge recombination interfaces in organic semiconductor devices [J]. *Organic Electronics*, 2012, **13**(6): 939-944.
- [24] DAI Y, ZHANG H, ZHANG Z, *et al.* Highly efficient and stable tandem organic light-emitting devices based on HATCN/HAT-CN:TAPC/TAPC as a charge generation layer [J]. *Journal of Materials Chemistry C*, 2015, **3**(26): 6809-6814.
- [25] PARK H, LEE J, KANG I, *et al.* Highly rigid and twisted anthracene derivatives: a strategy for deep blue OLED materials with theoretical limit efficiency [J]. *Journal of Materials Chemistry*, 2012, **22**(6): 2695-2700.
- [26] HUANG J, XU Z, YANG Y. Low-work-function surface formed by solution-processed and thermally deposited nanoscale layers of cesium carbonate [J]. *Advanced Functional Materials*, 2007, **17**(12): 1966-1973.
- [27] XIE G, FEHSE K, LEO K, *et al.* Novel PINP top-emitting organic light-emitting diodes with enhanced efficiency and stability [J]. *Organic Electronics*, 2013, **14**(9): 2331-2340.