

引用格式: ZHOU Xiao-gang, FENG Hai-wei, WU Chao, *et al.* Research on Improving Efficiency roll-off of Organic Light-emitting Devices Based on Bifunctional Electrode[J]. *Acta Photonica Sinica*, 2020, 49(1): 0123004

周小刚,冯海薇,武超,等. 双功能电极改善有机发光器件效率滚降的研究[J].光子学报,2020,49(1):0123004

## 双功能电极改善有机发光器件效率滚降的研究

周小刚<sup>1</sup>,冯海薇<sup>2</sup>,武超<sup>3</sup>,刘士浩<sup>2</sup>,谢文法<sup>2</sup>

(1 河南农业大学 理学院,郑州 450000)

(2 吉林大学 电子科学与工程学院,长春 130021)

(3 中原工学院 电子信息学院,郑州 450007)

**摘 要:**针对磷光器件存在严重的效率滚降,进而制约有机电致发光器件的实用化进程的问题,提出采用超声喷涂 Poly(3,4-ethylenedioxythiophene) Polystyrene Sulfonate (PEDOT:PSS) 作为透明电极,制备了红、绿、蓝三色有机电致发光器件.利用超声喷涂工艺材料利用率高的特点,起绝缘作用的水溶性 PSS 分子链在 PEDOT:PSS 透明电极中得到保留,使该透明电极具有空穴缓冲作用.这种双功能性,提高了器件在高电流密度下的载流子平衡性,降低了红、绿、蓝三色发光层中的极化子浓度,改善了红、绿、蓝三色器件的效率滚降问题,从最高外量子效率所在亮度到 10 000 cd/m<sup>2</sup> 的电流效率滚降分别仅为 14.9%、12.4% 和 16.0%.该结果表明,双功能性电极的引入显著改善了有机电致发光器件中载流子平衡性,具有降低三基色器件效率滚降的普适性,对实现高亮度、高效率发光器件具有重要意义.

**关键词:**有机电致发光二极管;有机半导体;超声喷涂;聚合物材料;半透明电极;效率

中图分类号:TN383+.1

文献标识码:A

doi:10.3788/gzxb20204901.0123004

## Research on Improving Efficiency Roll-off of Organic Light-emitting Devices Based on Bifunctional Electrode

ZHOU Xiao-gang<sup>1</sup>, FENG Hai-wei<sup>2</sup>, WU Chao<sup>3</sup>, LIU Shi-hao<sup>2</sup>, XIE Wen-fa<sup>2</sup>

(1 College of Science, Henan Agricultural University, Zhengzhou 450000, China)

(2 College of Electronic Science and Engineering, Jilin University, Changchun 130012, China)

(3 School of Electric and Information Engineer, Zhongyuan University of Technology, Zhengzhou 450007, China)

**Abstract:** To solve serious efficiency roll-off of phosphorescent organic light-emitting devices (OLEDs) that still hinders further development of OLEDs, ultrasonic spray coating poly (3,4-ethylenedioxythiophene) polystyrene sulfonate (PEDOT:PSS) films were proposed as transparent electrode for fabricating red, green and blue OLEDs. The water-soluble PSS molecular chain, which is insulating, was retained in the PEDOT:PSS transparent electrode by utilizing the high utilization rate of ultrasonic spraying materials, resulting in hole buffer effect of such PEDOT:PSS transparent electrode. Dual functions of this type of PEDOT:PSS transparent electrode is used to improve carrier balance under high current density, reduce the polaron density in the red, green and blue emitting layers, and finally improve the efficiency roll-off of these OLEDs. From the luminance of maximum current efficiency to the luminance of 10 000 cd/m<sup>2</sup>, efficiency roll-off of red, green and blue devices is only 14.9%, 12.4% and 16.0%, respectively. The results show that the introduction of dual functional electrode significantly improves carrier balance in organic luminescent devices, and is universal to reduce efficiency roll-off of

基金项目:国家自然科学基金(Nos. 61774074, 61905086)

第一作者:周小刚(1979-),男,讲师,硕士,主要研究方向为电子材料与器件. Email:zhouxiaogang1021@163.com

通讯作者:谢文法(1978-),男,教授,博士,主要研究方向为有机光电子学. Email:xiewf@jlu.edu.cn

收稿日期:2019-08-03;录用日期:2019-10-17

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

three primary color devices, which is of great significance to achieve high brightness efficient OLEDs.

**Key words:** Organic light-emitting diodes; Organic semiconductors; Ultrasonic spray coating process; Polymer materials; Transparent electrode; Efficiency

**OCIS Codes:** 230.3670; 240.0310; 310.6845; 310.7005; 160.4890

## 0 引言

目前,有机半导体被广泛地应用于光电子器件,如有机发光二极管(Organic Light-emitting Device, OLED)、有机太阳能电池(Organic Photovoltaic Cell, OPVC)和有机场效应晶体管(Organic Thin-film Transistor, OTFT)<sup>[1-3]</sup>.在这些光电子器件中,有机半导体的载流子传输特性对器件性能有着至关重要的影响<sup>[4-6]</sup>.由于光子的产生依赖于载流子复合状况,OLED器件对空穴、电子的传输平衡性有着严格的要求.然而,由于有机半导体在空穴和电子传输能力上表现出严重的不对称性,即有机半导体的空穴迁移率往往比电子迁移率高几个数量级<sup>[7-8]</sup>,这往往导致在发光层中空穴的数量总是大于电子的数量.

在缺少电子的情况下,多余的空穴无法形成激子,并且由于空穴极化子和激子之间的相互作用,多余空穴将导致一部分已形成的激子发生淬灭.在高电流密度情况下,发光层中空穴载流子与电子载流子之间的失衡往往更为严重,极化子与激子浓度较高,极化子与激子之间或者激子与激子之间相互碰撞的几率增大,使大量激子发生湮灭(激子与激子之间)或淬灭(激子与极化子之间),造成了OLED器件存在严重的效率滚降现象<sup>[9]</sup>.目前在器件物理研究方面,解决OLED效率滚降问题的主要策略有:1)分离载流子积累区与激子复合区位置;2)降低激子寿命;3)拓宽激子复合区宽度.华南理工大学马东阁等采用N,N'-二苯基-N,N'-(1-萘基)-1,1'-联苯-4,4'-二胺(N,N'-Bis-(1-naphthalenyl)-N,N'-bis-phenyl-(1,1'-biphenyl)-4,4'-diamine, NPB);乙酰丙酮酸二(4-(4-叔丁基-苯基)-噻吩[3,2-C']吡啶-C<sup>2'</sup>)合铱(III)(Iridium(III) bis(4-phenylthieno[3,2-c]pyridinato-N,C<sup>2'</sup>)acetylacetonate, PO-01)/NPB作为发光层,利用三线态、单线态激子在NPB中扩散距离不同的特性,避免激子受到界面极化子的淬灭影响,实现了功率效率达到74 lm/W @1 000 cd/m<sup>2</sup>的白光发射<sup>[10]</sup>.吉林大学王悦课题组采用具有双极特性的磷光材料在双发光层结构中分别作为主体和客体,实现了较宽的激子复合区,提高了激子的有效利用率,使白光器件在5 000 cd/m<sup>2</sup>下实现了56.5 lm/W @ (0.42,0.45)的发光效率<sup>[11]</sup>.

本文中,为了降低OLED器件的效率滚降,提出采用一种具有空穴缓冲功能的聚合物透明电极来增强OLED器件的载流子平衡性,降低极化子淬灭激子的几率,从而实现改善OLED器件效率滚降的目的.通过采用材料利用率较高的超声喷涂工艺,在保留PSS分子链的前提下,利用高浓度的亲水性高介电常数溶剂改变PEDOT分子链的构型,实现PEDOT:PSS薄膜的高导特性.通过大量保留具有电学绝缘特性PSS分子链,使这种类型的PEDOT:PSS薄膜同时具有显著的空穴缓冲作用<sup>[12]</sup>,与其导电透明电极功能相集成,有利于增强OLED器件的载流子的平衡性.基于这种双功能性超声喷涂聚合物电极所制备的红、绿、蓝三色OLED器件在效率滚降问题上将得到显著改善.

## 1 实验

实验中,所制备器件的衬底采用的是透明玻璃或预沉积ITO的透明玻璃.在使用前,衬底将经过Decon 90清洗剂清洗,去离子水超声清洗处理三次,每次5 min.清洗之后,使用氮气枪将衬底吹干,然后放入烘箱加热10 min(120℃)去除残留水分.待烘干衬底后,将其放置在多源有机分子气相沉积系统中,待真空度被抽至低于 $6 \times 10^{-4}$  Pa后进行器件制备.在有机分子气相沉积系统中,依次蒸镀空穴传输层、发光层、电子传输层、电子注入层及金属阴极,其中空穴传输层采用4,4'-环己基二[N,N'-二(4-甲基苯基)苯胺](Di-[4-(N,N-di-p-tolyl-amino)-phenyl]cyclohexane, TAPC)及4,4',4'-三(咔唑-9-基)三苯胺(4,4',4''-Tris(carbazol-9-yl)triphenylamine, TCTA),红绿光发光层主体材料采用4,4'-二(9-咔唑)联苯(4,4'-Bis(carbazol-9-yl)biphenyl, CBP),蓝光发光层主体采用9,9'-(2,6-吡啶二基二-3,1-亚苯)双-9H-咔唑(2,6-Bis(3-(9H-carbazol-9-yl)phenyl)pyridine, DczPPy),红绿蓝发光染料分别为(乙酰丙酮)双(2-甲基二苯并[f,h]喹啉啉)[Bis(2-methyldibenzo[f,h]quinoxaline)(acetylacetonate)iridium(III), Ir(MDQ)<sub>2</sub>(acac)], Ir(ppy)<sub>3</sub>及Firpic,发光层主客体掺杂比例为10 wt%,电子传输层为TmPyPB,电子注入层为LiF,金属阴极镁(Mg)银

(Ag)合金,掺杂比例为 10:1.通过石英晶体膜厚监测仪对各层薄膜制备过程的蒸镀速度及厚度进行实时监测,将各功能层的蒸镀速度控制在  $0.1\sim 0.2$  nm/s 左右,通过金属掩模版对有机功能层及阴极进行图形化,所形成的器件面积为  $10\text{ mm}^2$ .超声喷涂工艺采用东方金荣公司集成 D 型喷头的 UC320 系统完成,喷头和基板之间的高度差为 10 cm,所使用溶液为 PEDOT:PSS 的甲醇稀释液,比例为 1:14,喷涂过程中注液速率为  $3\text{ mL/min}$ ,每次喷涂液量为  $0.5\text{ mL}$ ,待溶剂挥发后进行下一次喷涂,每个样品共喷涂 4 次,之后 PEDOT:PSS 薄膜再经过  $120\text{ }^\circ\text{C}$ 、 $10\text{ min}$  的高温退火去除残留溶剂,所获得 PEDOT:PSS 薄膜的厚度约为  $200\text{ nm}$ ,其方块电阻约为  $130\ \Omega/\square$ .在室温条件大气环境下,通过以全光谱阵列光谱仪 MCPD-9800 为基础的日本大塚电子 OLED 光电性能测试系统对器件的光电特性进行了测试.

## 2 结果与讨论

超声喷涂 PEDOT:PSS 透明电极的制备流程如图 1(a).在该工艺流程中,通过结合自上而下的超声喷涂工艺以及金属掩模版,制备了具有图案化形状的 PEDOT:PSS 透明薄膜.先前的研究已证实<sup>[12]</sup>,由于制备薄膜所使用的 PEDOT:PSS 甲醇稀释液中含有高浓度的亲水性高介电甲醇溶剂,该工艺所制备的 PEDOT:PSS 薄膜在未移除具有电学绝缘特性的 PSS 分子链的前提下仍然可以展现出高导电性.采用该 PEDOT:PSS 薄膜作为透明电极,制备了红绿蓝三种颜色的 OLED 器件,其器件结构如图 1(b).采用该 PEDOT:PSS 薄膜作为电极的红、绿、蓝三色器件分别为器件 PE-R、PE-G 和 PE-B,为了对比,同样制备了具有相同结构而电极采用 ITO 的红、绿、蓝三色器件,分别为器件 ITO-R、ITO-G 和 ITO-B.

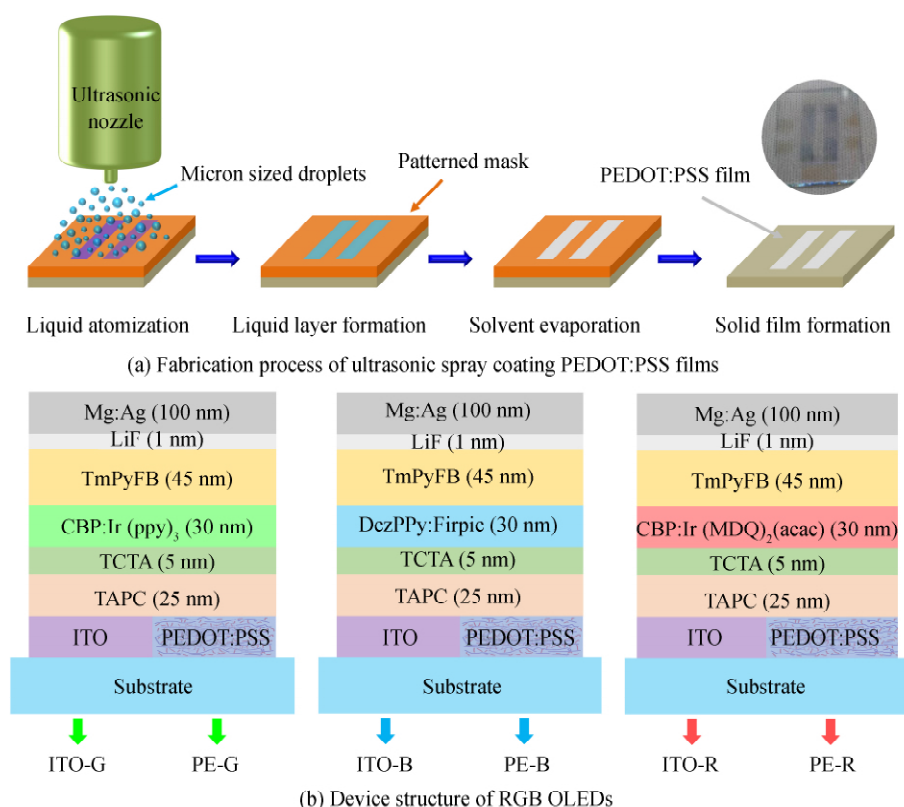


图 1 超声喷涂电极的制备流程及相应 OLED 器件的结构示意

Fig.1 Fabrication process of ultrasonic spray coating transparent electrode and structure schematic of corresponding OLEDs

首先,对基于超声喷涂 PEDOT:PSS 电极的绿光 OLED 器件的电致发光性能进行了研究.图 2(a)、(b) 分别为采用超声喷涂 PEDOT:PSS 电极及 ITO 电极的绿光器件 PE-G 及 ITO-G 的电流密度-电压-亮度特性曲线及电流效率-亮度-功率效率特性曲线.从器件的电流密度-电压特性曲线中可以看出,相比于器件 ITO-G,器件 PE-G 在同一驱动电压下的电流密度显著减少.在  $8\text{ V}$  下,器件 ITO-G 的电流密度可以达到  $283.5\text{ mA/cm}^2$ ,而器件 PE-G 的电流密度则仅为  $77.8\text{ mA/cm}^2$ .由于器件 ITO-G 及器件 PE-G 除了透明阳极外具有相同的有机功能层及阴极,因此器件 PE-G 的电流密度出现下降的原因应该归结于 PEDOT:PSS

电极.由于薄膜中保留了大量具有绝缘特性的 PSS 分子链,该 PEDOT:PSS 电极在器件中同时起到了缓冲空穴载流子注入的功能.

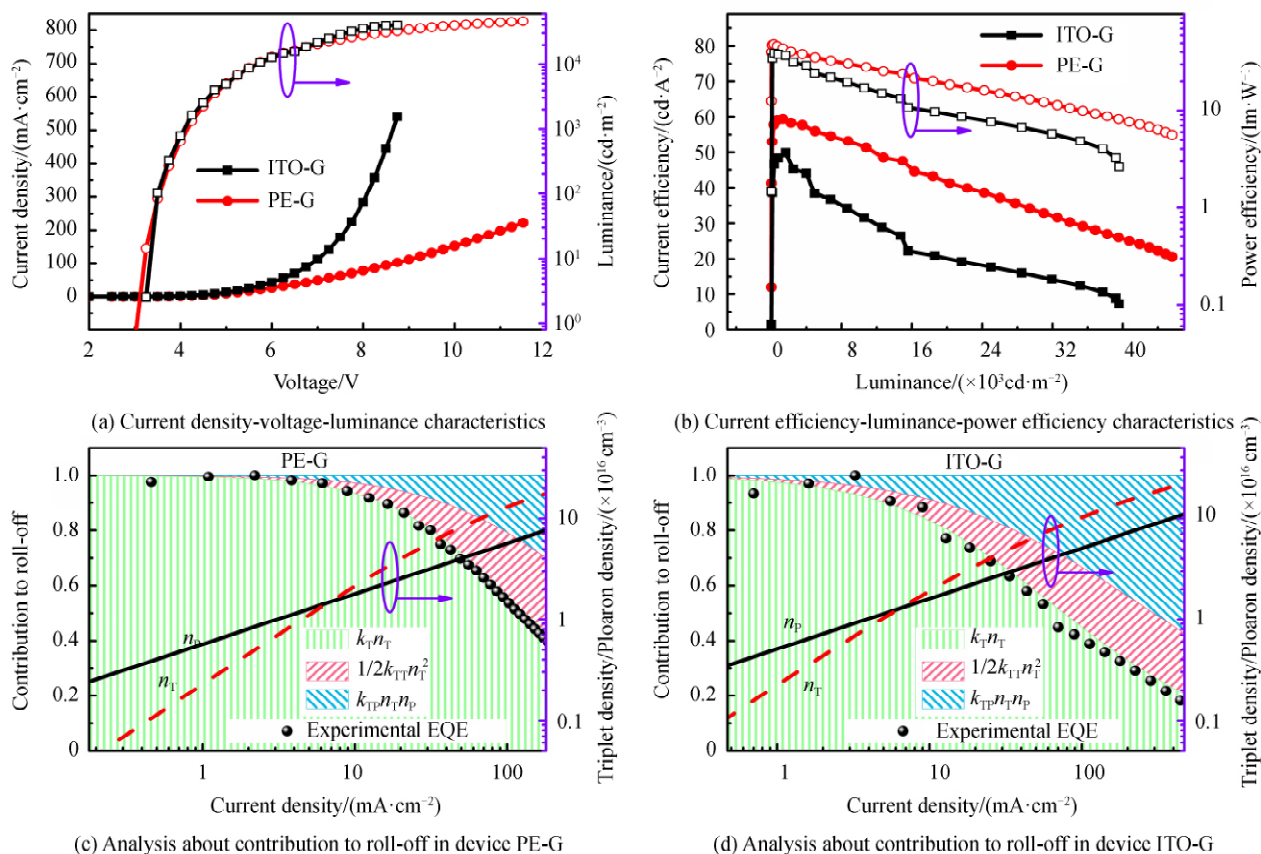


图 2 绿光器件 PE-G 及 ITO-G 的器件性能

Fig.2 Device performances of green devices PE-G and ITO-G

此外,由图 2 (a)可知,尽管器件 ITO-G 及器件 PE-G 在电流密度上存在显著的差异,但二者在发光亮度上的差异则变小了许多,在 8 V 下,器件 ITO-G 的亮度为 35 159 cd/m<sup>2</sup>,而器件 PE-G 的亮度也达到了 27 748 cd/m<sup>2</sup>.OLED 器件是一种电流驱动型器件,器件亮度与电流密度成正相关关系.与器件 ITO-G 相比,器件 PE-G 在电流密度显著下降的情况下仍然保持了较高的亮度水平.这表明 PEDOT:PSS 薄膜对空穴注入的缓冲作用在一定程度上提升了器件的载流子平衡性.因此,从两种器件的电流-亮度特性曲线中可以看出,器件 PE-G 在发光效率及效率滚降方面都表现出明显的优势,尤其在高亮度下,器件 PE-G 的电流效率及功率效率都明显高于器件 ITO-G.在 25 000 cd/m<sup>2</sup>下,器件 PE-G 的电流效率和功率效率分别达到了 38.0 cd/A 和 15.5 lm/W,而器件 ITO-G 的电流效率及功率效率则仅为 17.6 cd/A 和 7.6 lm/W.

为了深入探究超声喷涂 PEDOT:PSS 透明电极对器件性能的影响,采用激子动力学方程计算了 OLED 器件的极化子浓度、激子浓度以及极化子-三线态激子淬灭(Triplet-polaron Annihilation, TPA)及三线态激子-三线态激子湮灭(Triplet-triplet Annihilation, TTA),相关结果如图 2(c)、(d).所使用的激子动力学方程为<sup>[12-13]</sup>

$$\frac{dn_T}{dt} = k_L n_P^2 - k_T n_T - \frac{1}{2} k_{TT} n_T^2 - k_{TP} n_T n_P \quad (1)$$

$$\frac{dn_P}{dt} = \frac{j}{qw} - k_L n_P^2 \quad (2)$$

式中,  $n_P$  为极化子浓度,  $n_T$  为三线态激子浓度,  $k_L$  为朗之万复合速率,  $k_T$  为三线态激子寿命的倒数,  $k_{TT}$  为 TTA 速率,  $k_{TP}$  为 TPA 速率,  $j$  为电流密度,  $w$  为复合区宽度.由图 2(c)、(d)可知,相比于器件 ITO-G,器件 PE-G 的外量子效率(External Quantum Efficiency, EQE)的效率滚降得到显著改善.此外,器件 PE-G 的效率由 TPA 引起的损耗远低于器件 ITO-G.这表明超声喷涂 PEDOT:PSS 电极对空穴载流子的缓冲作用显



著改善了器件的载流子平衡性,减小了发光层中积累的空穴极化子浓度,从而降低了器件内的 TPA 发生的几率。

随后,对超声喷涂 PEDOT:PSS 对蓝光和红光器件效率滚降所产生的影响进行了研究.图 3(a)、(b)分别为采用超声喷涂 PEDOT:PSS 电极及 ITO 电极的蓝光器件 PE-B 及 ITO-B 的电流密度-电压-亮度特性曲线及电流效率-亮度-功率效率特性曲线,图 4(a)、(b)为红光器件 PE-R 及 ITO-R 的光电特性曲线.从器件的电流密度-电压特性曲线中可以看出,与绿光器件相同,器件 PE-B 和 PE-R 在同一驱动电压下的电流密度明显低于器件 ITO-B 或 ITO-R.这表明超声喷涂 PEDOT:PSS 电极对空穴载流子的缓冲作用同样适用于蓝光器件及红光器件.与绿光器件不同的是,蓝光器件 PE-B 及红光器件 PE-R 在低电压(4~8 V)下发光效率低于相应的 ITO 器件.这主要是因为所采用超声喷涂 PEDOT:PSS 电极存在较为粗糙的表面形貌,如图 5 所示,PEDOT:PSS 薄膜的表面起伏明显,高度差异较大,表面粗糙度为 1.81 nm,而 ITO 透明电极的表面较为平坦,表面粗糙度仅为 0.51 nm.PEDOT:PSS 较为粗糙的表面易导致器件在低压范围存在严重的漏电流现象,如蓝光器件 PE-B 在 3 V 时电流为 0.84 mA/cm<sup>2</sup>,而蓝光器件 ITO-B 在 3 V 时电流为 3.82 × 10<sup>-6</sup> mA/cm<sup>2</sup>,红光器件 PE-R 在 3 V 时电流为 0.30 mA/cm<sup>2</sup>,而红光器件 ITO-B 在 3 V 时电流为 1.69 × 10<sup>-4</sup> mA/cm<sup>2</sup>.尽管这样,在高电压下,蓝光器件 PE-B 及红光器件 PE-R 发光效率上同样明显优于相应的 ITO 器件.在 9 V 时,蓝光器件 PE-B 的电流和功率效率分别为 25.1 cd/A 和 8.8 lm/W,而蓝光器件 ITO-B 则分别为 16.9 cd/A 及 5.9 lm/W;在 10 V 下,红光器件 PE-R 的电流和功率效率分别为 18.7 cd/A 和 5.9 lm/W,而蓝光器件 ITO-R 则分别仅为 13.2 cd/A 和 4.2 lm/W.这表明采用超声喷涂 PEDOT:PSS 作为电极的红光、蓝光器件在效率滚降方面同样地得到了显著改善。

同样地,采用激子动力学方程模拟了蓝光及红光 OLED 器件的极化子浓度、激子浓度以及极化子-三线态激子湮灭及三线态激子-三线态激子湮灭,相关结果如图 3(c)、(d)和图 4(c)、(d).从图中以及表 1 可知,相比于器件 ITO-B 或 ITO-R,器件 PE-B 和 PE-R 的 EQE 效率滚降得到显著改善,其中 TPA 引起的损耗的降

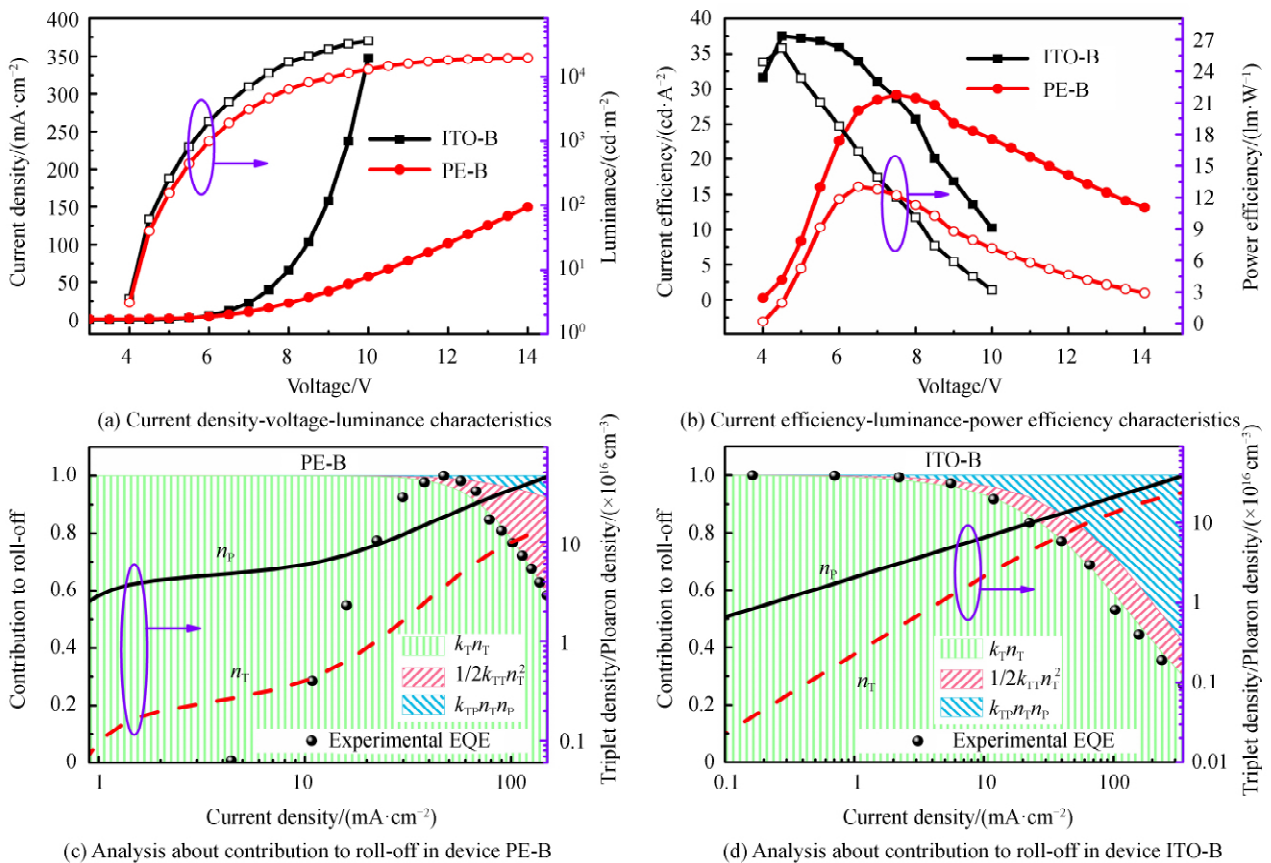


图 3 蓝光器件 PE-B 及 ITO-B 的器件性能

Fig.3 Device performances of blue devices PE-B and ITO-B

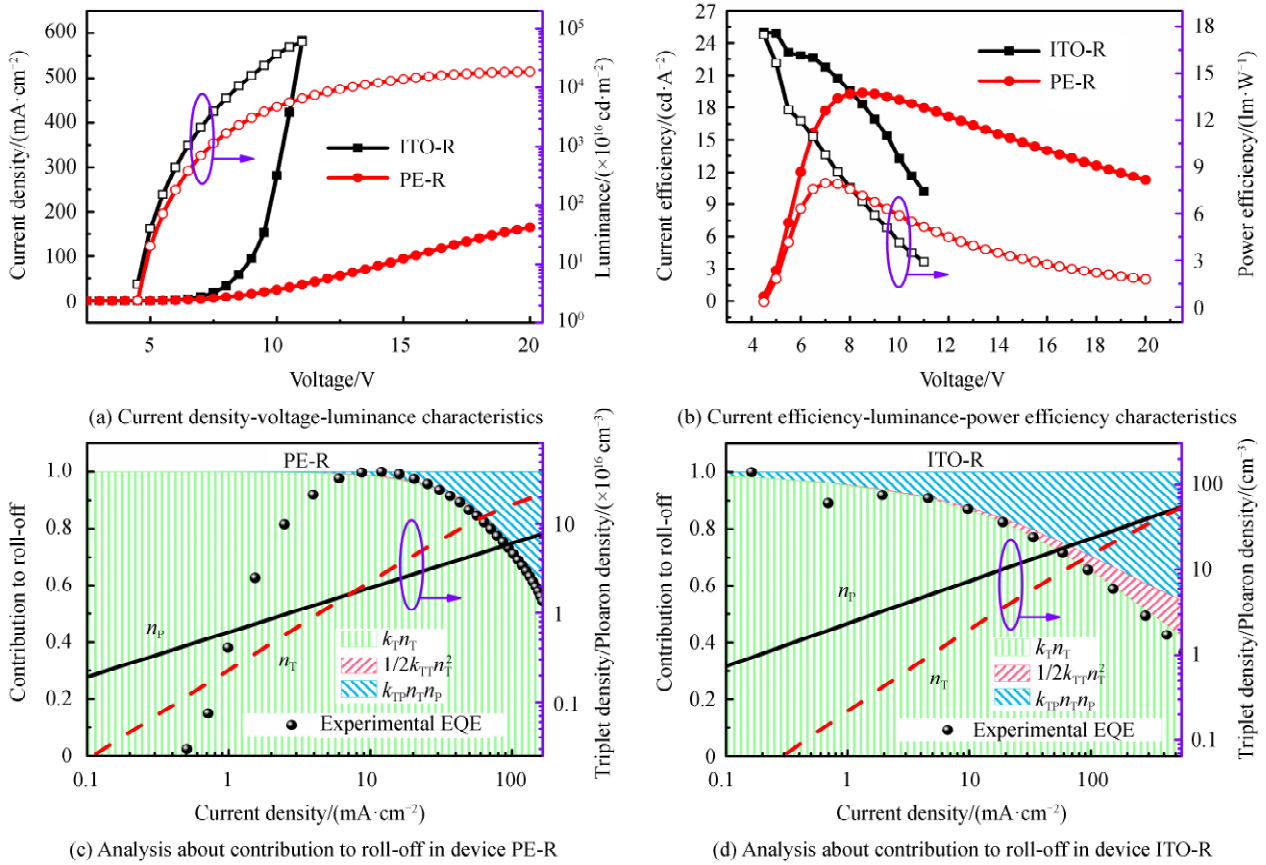


图 4 红光器件 PE-B 及 ITO-B 的器件性能

Fig.4 Device performances of red devices PE-R and ITO-R

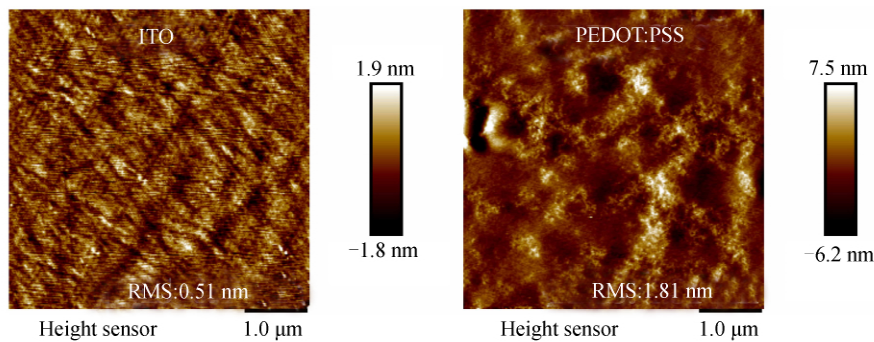


图 5 ITO 电极和 PEDOT:PSS 电极的 AFM 形貌

Fig.5 AFM images of ITO and PEDOT:PSS transparent electrodes

低是改善 EQE 效率滚降的主要原因.该结果表明,超声喷涂 PEDOT:PSS 电极对空穴载流子的缓冲作用同样可以改善红光和蓝光器件的载流子平衡性,降低红光和蓝光发光层中积累的空穴极化子浓度.

最后,对比分析了两种类型 OLED 器件的电致发光光谱特性.图 6(a)~(c)分别为绿、蓝及红光器件在  $1000 \text{ cd/cm}^2$  下的归一化电致发光光谱.采用超声喷涂 PEDOT:PSS 透明电极的绿光器件 PE-G 及红光器件 PE-R 的发光光谱与它们相应 ITO 器件的发光光谱几乎相同.然而,相比于 ITO 器件 ITO-B,蓝光器件 PE-B 在  $500 \text{ nm}$  处的侧峰强度明显下降.以上结果可以归结于蓝光器件的光谱受到器件内微腔效应的影响.根据法布里-珀罗方程<sup>[14,15]</sup>,OLED 内的共振波长可以通过公式  $\sum_i \frac{4\pi d_i n_i(\lambda)}{\lambda} - \phi_t(\lambda) - \phi_b(\lambda) = 2m\pi$  得到,其中  $\lambda$  为波长, $\phi_t(\lambda)$  及  $\phi_b(\lambda)$  分别为光受到顶电极和底电极反射后所发生的相位移动, $m$  为模数(仅为整数), $d_i$  为各有机功能层的厚度, $n_i$  为各有机功能层的折射率.计算所得到的光到达镁银合金电极及超声喷涂

PEDOT:PSS 电极或 ITO 时所发生的反射相移之和,以及光穿过有机层所发生的传输相移曲线如图 6(d)。反射相移曲线与传输相移曲线存在唯一交点,只有在该交点位置,法布里-珀罗方程方能成立,因此交点所处波长位置对应于 OLED 器件的共振波长。根据图 6(d),ITO 器件的共振波长为 500 nm,而超声喷涂 PEDOT:PSS 器件的共振波长则为 466 nm。可以看出,在超声喷涂 PEDOT:PSS 器件中,共振波长远离器件的本征发光峰,因此器件的电致发光光谱并没有受到微腔效应的影响。然而,在 ITO 器件中,共振波长正好处于蓝光器件发光光谱的侧峰位置,因此蓝光器件 ITO-B 的侧峰在微腔效应的作用下得到增强;而处于 500 nm 的共振峰远离绿光及红光的本征发光峰,因此,红光、绿光器件 ITO-R 和 ITO-G 并没有受到微腔效应的明显影响。

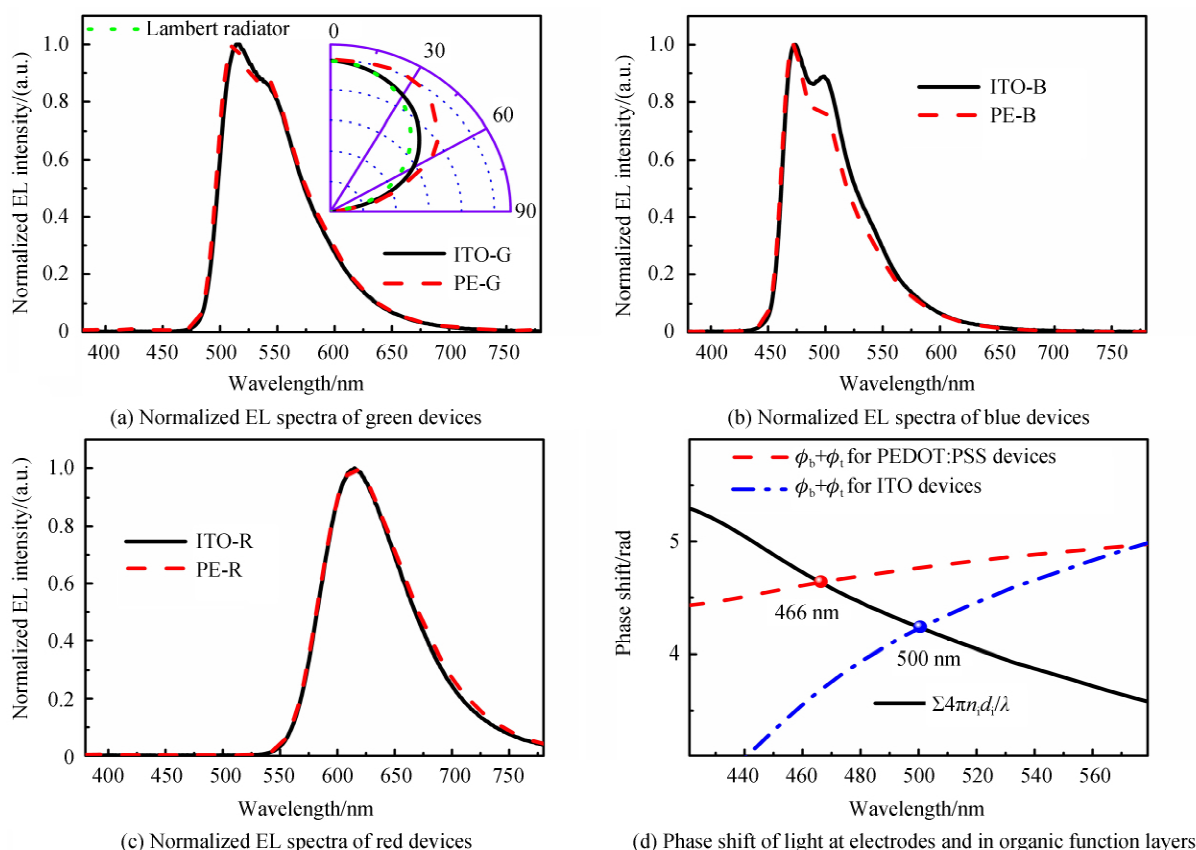


图 6 器件归一化电致光谱及器件共振峰波长

Fig.6 Normalized EL spectra and resonant wavelength

表 1 红、绿、蓝三色 OLED 器件的性能

Table 1 Device performances of red, green and blue OLEDs

Device	Maximum values			@100 mA/cm <sup>2</sup>		
	CE/(cd · A <sup>-1</sup> )	PE/(lm · W <sup>-1</sup> )	EQE/%	CE/(cd · A <sup>-1</sup> )	PE/(lm · W <sup>-1</sup> )	EQE/%
Green	PE-G	59.4	48.4	17.0	31.6	9.1
	ITO-G	29.2	39.0	14.3	20.1	5.8
Blue	PE-B	29.2	13.0	12.9	17.8	7.5
	ITO-B	37.5	26.2	17.2	20.1	9.1
Red	PE-R	19.4	8.0	14.0	14.4	10.0
	ITO-R	25.0	17.4	17.6	16.8	11.5

### 3 结论

本文采用超声喷涂工艺制备了图案化 PEDOT:PSS 薄膜,并将其作为透明电极,实现了性能优良的红绿蓝三色 OLED 器件。与采用 ITO 电极的器件相比,基于超声喷涂 PEDOT:PSS 透明电极的 OLED 器件在效率滚降方面得到显著改善,从最高外量子效率所在亮度到 10 000 cd/m<sup>2</sup> 的红、绿、蓝三色器件的电流效率

滚降分别仅为 14.9%、12.4%和 16.0%。理论模拟结果表明,采用超声喷涂 PEDOT:PSS 替代 ITO 电极,有助于改善器件内的载流子平衡性,减小发光层中极化子浓度,从而降低极化子对三线态激子的淬灭几率。有机材料通常具有极不对称的空穴、电子的传输特性,空穴传输材料的空穴迁移率远优于电子传输材料的电子迁移率,这造成发光层中大量空穴极化子的积累,进而对激子产生严重的淬灭效果。本工作结果表明双功能性电极作为阳极可以显著缓冲空穴载流子的注入,改善有机电致发光器件中载流子平衡性,具有降低三基色器件效率滚降的普适性,对实现高亮度、高效率发光器件具有重要意义。

#### 参考文献

- [1] YIN Yong-ming, ALI M U, XIE Wen-fa, *et al.* Evolution of white organic light-emitting devices; from academic research to lighting and display applications[J]. *Materials Chemistry Frontiers*, 2019, **3**(6): 970-1031.
- [2] BRÉDAS J L, CALBERT J P, DA SILVA F, *et al.* Organic semiconductors: A theoretical characterization of the basic parameters governing charge transport[J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 2002, **99**(9): 5804-5809.
- [3] LIU Shi-hao, ZHANG Xiang, FENG Hai-wei, *et al.* Two-dimensional-growth small molecular hole-transporting layer by ultrasonic spray coating for organic light-emitting devices[J]. *Organic Electronics*, 2017, **47**: 181-188.
- [4] WU Zhong-bin, MA Dong-ge. Recent advances in white organic light-emitting diodes [J]. *Materials Science and Engineering: R: Reports*, 2016, **107**: 1-42.
- [5] LIU Shi-hao, ZHANG Xiang, WANG Shi-rong, *et al.* Hybrid organic light-emitting device based on ultrasonic spray-coating molybdenum trioxide transport layer with low turn-on voltage, improved efficiency & stability[J]. *Organic Electronics*, 2018, **52**: 264-271.
- [6] CHAI Yuan, WANG Jun-dong, LIU Si-yi, *et al.* High-efficiency white organic light-emitting diodes with dual-emitting layer[J]. *Acta Photonica Sinica*, 2019, **48**(8): 0823003.  
柴源, 王竣冬, 刘思驿, 等. 高效率双发光层结构白色有机电致发光器件[J]. 光子学报, 2019, **48**(8): 0823003.
- [7] CUI L S, RUAN S B, BENCHEIKH F, *et al.* Long-lived efficient delayed fluorescence organic light-emitting diodes using n-type hosts[J]. *Nature Communications*, 2017, **8**(1): 2250-2257.
- [8] COROPCEANU V, CORNIL J, DA SILVA F, *et al.* Charge transport in organic semiconductors[J]. *Chemical reviews*, 2007, **107**(4): 926-952.
- [9] LIU Shi-hao, ZHANG Xiang, YIN Mao-jun, *et al.* Coffee-ring-free ultrasonic spray coating single-emission layers for white organic light-emitting devices and their energy-transfer mechanism[J]. *ACS Applied Energy Materials*, 2017, **1**(1): 103-112.
- [10] ZHAO Fang-chao, WEI Ying, XU Hui, *et al.* Spatial exciton allocation strategy with reduced energy loss for high-efficiency fluorescent/phosphorescent hybrid white organic light-emitting diodes[J]. *Materials Horizons*, 2017, **4**(4): 641-648.
- [11] DU Ming-xu, FENG Yan-song, ZHU Dong-xia, *et al.* Novel emitting system based on a multifunctional bipolar phosphor: an effective approach for highly efficient warm-white light-emitting devices with high color rendering index at high luminance[J]. *Advanced Materials*, 2016, **28**(28): 5963-5968.
- [12] LIU Shi-hao, YU Hong-wei, ZHANG Qing-yang, *et al.* Efficient ITO-free organic light-emitting devices with dual-functional PSS-rich PEDOT: PSS electrode by enhancing carrier balance[J]. *Journal of Materials Chemistry C*, 2019, **7**(18): 5426-5432.
- [13] MURAWSKI C, LEO K, GATHER M C. Efficiency roll-off in organic light-emitting diodes[J]. *Advanced Materials*, 2013, **25**(47): 6801-6827.
- [14] LIU Shi-hao, LIU Jian, WEN Xue-mei, *et al.* Angle-stable RGBW top-emitting organic light-emitting devices with Ag/Ge/Ag cathode[J]. *Optics Letters*, 2013, **38**(10): 1742-1744.
- [15] XU Wan-li, WU Zhi-jun, Research on tandem warm white organic light-emitting devices with fine viewing angle property of spectrum[J]. *Acta Photonica Sinica*, 2019, **48**(4): 0423004.  
许万里, 吴志军. 光谱角度特性良好的叠层暖白光有机电致发光器件的研究[J]. 光子学报, 2019, **48**(4): 0423004.