

波浪形界面结构的 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{PMMA}$ 交叠薄膜设计与力学性能仿真*

赵金威¹, 洪德铭², 周雄图², 张永爱², 吴朝兴², 郭太良², 林坚普^{1**}

(1. 福州大学先进制造学院, 福建泉州 362200; 2. 福州大学物理与信息工程学院, 福州 350116)

摘要: 文章以 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{PMMA}$ 交叠薄膜为例, 在其交叠界面处引入波浪形结构, 通过增加 Al_2O_3 在弯曲方向的实际长度改善其力学性能。采用有限元仿真方法对 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{PMMA}$ 交叠薄膜结构进行建模, 分别研究了波浪形结构形貌、周期、深度和 PMMA 厚度等参数对交叠薄膜弯曲性能的影响规律。仿真结果表明, 波浪形界面结构能较大提高交叠薄膜的弯曲性能, 当波浪形结构的周期在 500~1 500 nm, 深度在 600~1 600 nm 范围内, PMMA 厚度为 6 μm 时, 交叠薄膜具有较好的弯曲性能, 相比于没有引入界面结构的交叠薄膜, 同等条件下产生的最大应力下降了超过 70%, 有效提升了封装薄膜的弯曲性能, 对后续无机/有机交叠薄膜的制备工艺具有指导意义。

关键词: 柔性有机发光二极管显示; 薄膜封装; 有限元仿真; 界面结构; 弯曲性能

中图分类号: TN383; TN873 **文献标志码:** A **文章编号:** 1005-488X(2022)04-0286-06

Design and Mechanical Simulation of $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{PMMA}$ Laminates with Wavy Interface Structures

ZHAO Jinwei¹, HONG Deming, ZHOU Xiongtu, ZHANG Yongai, WU Chaoxing,
GUO Tailiang, LIN Jianpu

(1. School of Advanced Manufacturing, Fuzhou University, Quanzhou Fujian 362200, CHN;
2. School of Physics and Information Engineering, Fuzhou University, Fuzhou 350116, CHN)

Abstract: The structure of $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{PMMA}$ overlapping thin films was modeled by finite element simulation method, and the effects of wave structure morphology, period, depth and PMMA thickness on the bending properties of overlapping thin films were studied, respectively. Simulation results showed that the wavy interface structure could greatly improve the bending properties of the overlapping thin film. When the wavy structure had a period of 500~1 500 nm, a depth of 600~1 600 nm and the thickness of PMMA was 6 μm , the overlapping thin film had better bending properties. Under the same conditions, the maximum stress was reduced by more than 70% compared with the overlapping

收稿日期: 2022-06-14

* **基金项目:** 福建省教育厅中青年教师教育科研项目(JAT210030); 福建省自然科学基金(2021J01577); 闽都创新实验室自主部署项目(2021ZZ130)

作者简介: 赵金威(1995—), 男, 硕士研究生, 研究方向为 OLED 器件封装; (E-mail: 550107242@qq.com)

洪德铭(1997—), 男, 硕士研究生, 研究方向为 OLED 器件封装;

周雄图(1982—), 男, 教授, 研究方向为光电功能材料与器件, 3D 显示及应用。

** **通讯作者:** 林坚普(1989—), 男, 讲师, 研究方向为新型显示技术、人工智能技术、3D 立体显示技术。

thin film without the interface structure, which could effectively improve the bending performance of the encapsulated thin film. It had guiding significance for the preparation of inorganic/organic overlapping thin films.

Key words: flexible OLED display; thin film encapsulation; finite element simulation; interface structure; bending performance

引言

柔性 OLED 显示有望引领下一代智能显示的发展方向,具有广阔的市场前景^[1-2]。可靠的薄膜封装对提高柔性 OLED 器件寿命,进一步推动其产业化发展至关重要^[3-4]。OLED 器件对封装具有极为苛刻的要求,实用化 OLED 器件通常要求其水汽透过率(Water Vapor Transmission Rate, WVTR)和氧气透过率(Oxygen Transmission Rate, OTR)必须分别低于 10^{-6} g/m²/day 和 10^{-5} cm³/m²/day^[5-6]。常见薄膜封装结构包括单层无机薄膜、无机纳米叠层薄膜、有机/无机交叠薄膜等。其中,无机/有机交叠薄膜结构被认为是最有前景的薄膜封装技术之一,已被广泛应用于柔性 OLED 封装^[7-9]。

在无机/有机交叠薄膜结构中,一般采用致密的氧化物作为无机层,对水汽和氧气起阻隔作用。然而,无机氧化物材料一般质地较脆,容易在弯曲过程引起断裂导致水氧阻隔性能下降等问题。如经常采用的 Al₂O₃ 薄膜,其断裂的临界应变一般小于 0.5%。加入有机层的主要目的,一方面用于抑制无机薄膜产生的缺陷,并延长水氧分子的渗透路径,提高封装薄膜的阻隔性能;另一方面用于释放无机薄膜的应力,改善封装薄膜的弯曲性能^[10]。事实上,由于材料设计上高水氧阻隔性和高柔韧性的材料无法兼得^[11-16],从薄膜封装结构上对无机/有机薄膜的弯曲性能进行改进越来越引起研究者的关注。弹簧结构和悬空褶皱金属互联结构已被广泛用于可拉伸器件的电极中,可提高器件的拉伸性能^[17]。受此启发,文章在交叠薄膜结构中的无机和有机薄膜界面引入了波浪形结构,通过增加无机薄膜在弯曲方向的实际长度,降低交叠薄膜在受力弯曲条件下的最大应力,改善交叠薄膜的整体力学性能。采用有限元仿真方法对 Al₂O₃/PMMA 交叠薄膜结构进行建模,分别研究了波浪形结构形貌、周期、深度和 PMMA 厚度等参数对交叠薄膜弯曲性能的影响规律,获得最优化波浪形 Al₂O₃/PMMA 交

叠薄膜结构。

1 仿真方法

当薄膜发生弯曲时,其内部会产生应力,并且不同位置的应力通常不一样,当最大应力值超过薄膜的承受能力时,会导致薄膜产生裂纹甚至碎裂,从而影响薄膜的水氧阻隔性能;因此,可以通过获取薄膜内部的最大应力来反映薄膜的弯曲性能。变形和应力是固体力学中两个基础的物理量,应力通常与物体的形变和杨氏模量相关。在建模过程中使用多物理场有限元分析软件来对模型进行构建与分析,将某一材料的变形过程近似为材料内所有粒子位移的总和,用应力反映物体发生变形时内部单位面积所承受的负载。使用拉格朗日公式和 von Mises 准则来得到变形过程和求解应力值^[18-19],表达式如下:

$$E = \sigma/\epsilon \quad (1)$$

$$x(t + \Delta t) = x(t) + v'\Delta t \quad (2)$$

$$\text{von Mises} = \sqrt{\frac{(a_1 - a_2)^2 + (a_2 - a_3)^2 + (a_3 - a_1)^2}{2}} \quad (3)$$

$$\epsilon = \lim_{L \rightarrow 0} \left(\frac{\Delta L}{L} \right) \quad (4)$$

式(1)的物理含义为:物体在外力作用下将发生形变,其中 E 表示杨氏模量, σ 表示正向应力, ϵ 表示应变;式(2)的物理含义为:粒子的初始位置为 $x(t)$,经过时间 Δt ,该粒子由于材料的变形而发生移动,移动到新位置为 $x(t + \Delta t)$, $v'\Delta t$ 表示为初始位置指向其新位置的矢量,该过程如图 1 所示;式(3)的物理含义为:当物体处于一定的变形情况下,

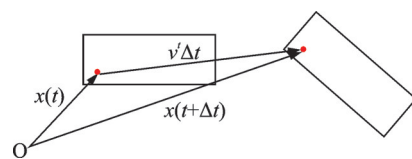


图1 材料形变的原理图

Fig. 1 Schematic of material deformation

物体内部某点的弹性能达到某个数值时,物体便开始屈服。其中, a_1, a_2 和 a_3 分别表示第一主应力、第二主应力以及第三主应力。在力学领域,常用该值来反映物体的疲劳以及破坏情况。式(4)的物理含义为:物体在受到外力作用下会产生一定的正应变,式中 L 是变形前的长度, ΔL 是其变形后的伸长量。

基于上述理论,为降低计算量,所有的交叠薄膜均采用二维模型,其中模型长度固定为 $50 \mu\text{m}$,所用材料及其相关参数如表 1 所示^[16]。参数设定完毕后,固定模型的左端,并对模型右端施指定弯曲的位移,使得模型发生弯曲,求出模型弯曲时其内部的 von Mises 应力,并且得到模型的弯曲应力分布图。仿真中假设模型的弯曲只存在弹性形变,并且每层之间的材料不会相互渗透。

表 1 仿真所用材料的相关参数

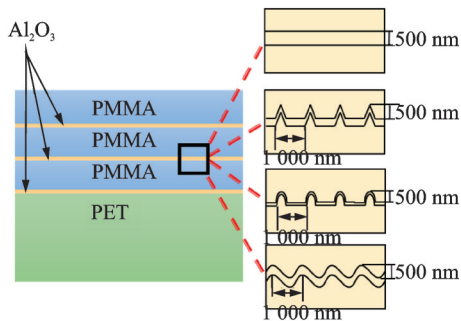
Tab. 1 Related parameters of materials used in simulation

材料名称	杨氏模量/GPa	泊松比	厚度/ μm
PET	3.2	0.3	10
PMMA	3	0.4	3
Al_2O_3	400	0.22	0.06

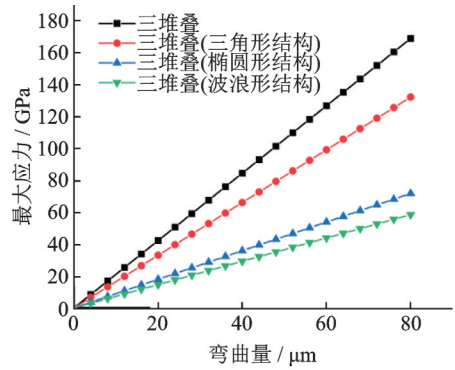
2 结果与讨论

2.1 界面结构对薄膜弯曲性能的影响

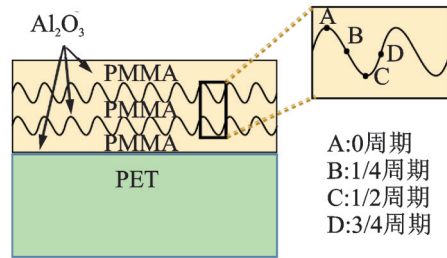
将不同的图案结构引入 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{PMMA}$ 交叠薄膜界面中,研究界面结构对薄膜弯曲性能的影响,与没有引入界面结构的 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{PMMA}$ 交叠薄膜进行对比。建立了三堆叠的平面 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{PMMA}$ 交叠薄膜、三角形结构 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{PMMA}$ 交叠薄膜、椭圆形结构 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{PMMA}$ 交叠薄膜和波浪形结构 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{PMMA}$ 交叠薄膜四种模型,如图 2(a)所示。三种图案结构的周期和深度保持一致,分别为周期 1000 nm 和深度 500 nm ,其余参数与平面界面结



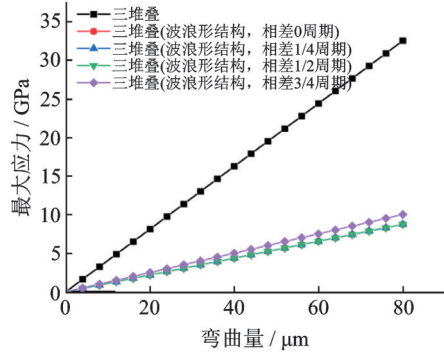
(a) 不同结构的交叠薄膜



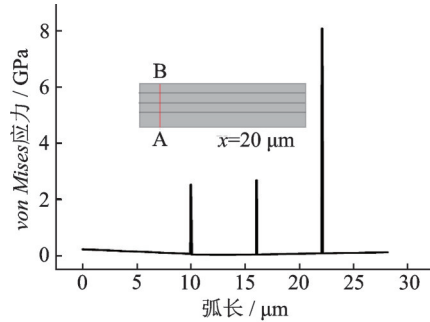
(b) 不同结构下薄膜弯曲量与最大应力关系图



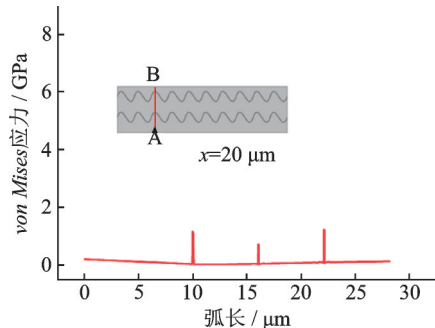
(c) 不同相对位置的波浪形交叠薄膜



(d) 不同相对位置下薄膜弯曲量与最大应力关系图



(e) 平面交叠薄膜AB垂直线上的应力分布



(f) 波浪形交叠薄膜AB垂直线上的应力分布

图 2 纳米微结构仿真模型

Fig. 2 Simulation model of nano-microstructure

构的 Al₂O₃/PMMA 交叠薄膜一致。通过控制模型的最大弯曲量对薄膜进行应力稳态研究,发现界面结构的引入均可以有效降低薄膜由于弯曲产生的最大应力,提高薄膜的弯曲性能,如图 2(b)所示。由式(1)可知界面结构能够减小最大应力的原因在于最大应力是由应变和杨氏模量共同决定,而 Al₂O₃ 的杨氏模量远大于 PMMA,故交叠薄膜的最大应力会分布在 Al₂O₃ 薄膜上。施加相同外力时,交叠薄膜形变产生的弯曲量是一致的(由式(4)可知,即 ΔL 一致),相比于平面界面结构的交叠薄膜,在 Al₂O₃/PMMA 交叠薄膜界面处形成三角形、椭圆形和波浪形等周期起伏的微纳米结构,可以提高 Al₂O₃ 在弯曲方向的实际长度 L 来达到减少弯曲产生的应变的效果。此外类似弹簧的波浪形结构 Al₂O₃/PMMA 交叠薄膜在弯曲方向的实际长度比三角形、椭圆形更大,因此相比之下表现出最好的弯曲性能^[22-24]。其中,波浪形结构相较于平面界面结构的三堆叠薄膜,最大应力降低了约 65%。

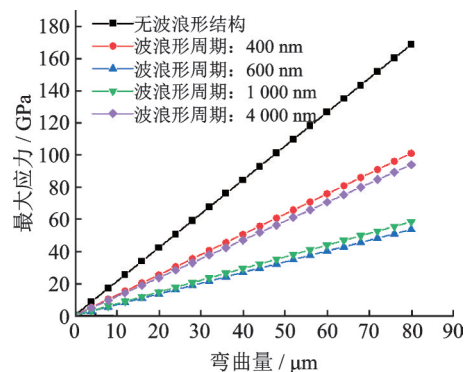
当薄膜受力向内弯曲时,薄膜下部会出现平行于薄膜表面的压应力,而上部会出现平行于薄膜表面的张应力。当压应力与张应力过大时,会导致薄膜的破裂和剥离。因此,波浪形界面结构的引入有望改善 Al₂O₃/PMMA 薄膜的机械稳定性。但由于制备工艺的限制,难以精确地控制上下两层波浪形结构相对位置,因此需要进一步研究上下两层波浪形结构相对位置对交叠薄膜弯曲性能的影响,如图 2(c)所示。将弯曲量固定为 20 μm ,通过改变上下两层波浪形结构的相对位置,分别研究了波浪形结构相位差为 0、1/4 周期、1/2 周期和 3/4 周期时薄膜弯曲的最大应力,结果如图 2(d)所示。发现上下层波浪形结构的相对位置对薄膜弯曲性能的影响较小,其应力都远小于平面结构的交叠薄膜。其原因在于相对位置改变后但对上下两层相对距离的最大值影响不大,而在相对距离最远处可以最大程度提高弯折时 Al₂O₃ 的长度,因此在工艺制备时不用刻意要求上下两层波浪形结构的相对位置。

对有无波浪形界面结构的 Al₂O₃/PMMA 交叠薄膜从 A 点到 B 进行垂直应力扫描,分析各层的受力情况,应力的线性分布如图 2(f)、(g)所示。可以发现引入波浪形结构后,在交叠薄膜中各个无机层的

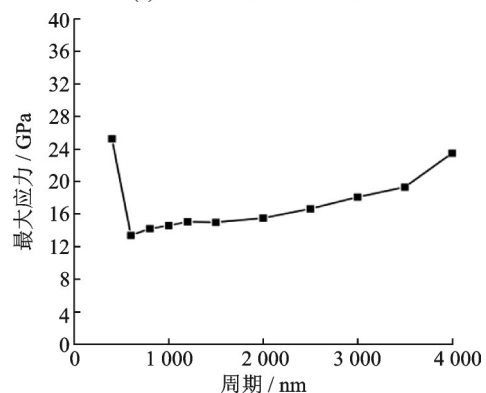
同一位置,应力值都大幅降低。平面结构的 Al₂O₃/PMMA 交叠薄膜最大应力约为 41 GPa,波浪形 Al₂O₃/PMMA 交叠薄膜内部的最大应力减少至 19 GPa,且弯曲量越大,波浪形结构改善薄膜弯曲性能的效果越明显。

2.2 波浪形结构参数对薄膜弯曲性能的影响

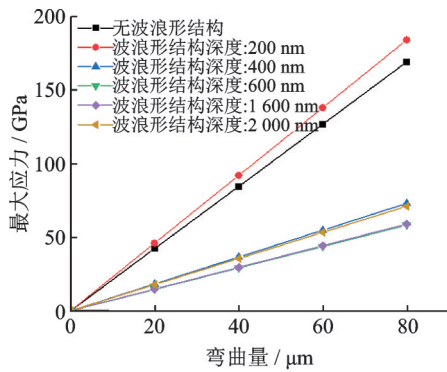
为了深入研究波浪形结构参数对 Al₂O₃/PMMA 交叠薄膜弯曲性能的影响,通过控制单一参数变量的方法,固定薄膜的弯曲量(20 μm),分别改变波浪形深度和周期。得到两个参数对薄膜最大应力的影响规律。仿真结果再次验证了波浪形结构的引入可以有效降低交叠薄膜的最大应力,如图 3(a)、(b)所示。当波浪形周期从 400 nm 增加至 600 nm 时,薄膜内的最大应力急剧下降,随后随着周期增大应力小幅度增加。直到周期超过 3 500 nm 时,最大应力涨幅才较为明显。但即使波浪形周期达到 4 000 nm,减小的最大应力仍在 50% 以上。出现这类规律的原因在于当周期较小时,波浪型结构近似为上下两个三角形结构,而此前已经证明同一深度下三角形结构的应力比波浪形结构大,那么随着周期减小波浪形结构就越接近为三角形,称之为类三角形结构。但由于类三角形结构深度与三角



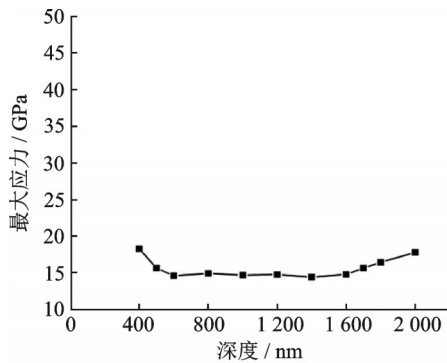
(a) 周期与薄膜最大应力关系图



(b) 不同周期的波浪形薄膜的最大应力



(c) 深度与薄膜最大应力关系图



(d) 不同深度的波浪形薄膜的最大应力

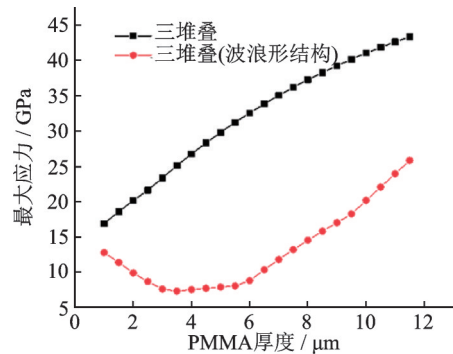
图 3 波浪形结构参数对三堆叠波浪形 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{PMMA}$ 交叠薄膜弯曲性能的影响Fig. 3 Effect of wavy structure parameters on the flexural properties of 3-dyads wavy $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{PMMA}$ stacking films

形结构一致,也就解释了这种情况下周期减小而应力增大的原因。随着周期增大波浪形结构会使有机层与无机层在弯曲方向上的接触长度增大,柔软的有机层更好地降低了位于无机薄膜上的应力。但当周期增加到一定程度时,波浪形结构会近似为平面结构,应力大幅度增加。以上规律说明周期控制在合理的范围内,可以最大化利用该结构降低薄膜的最大应力^[17]。

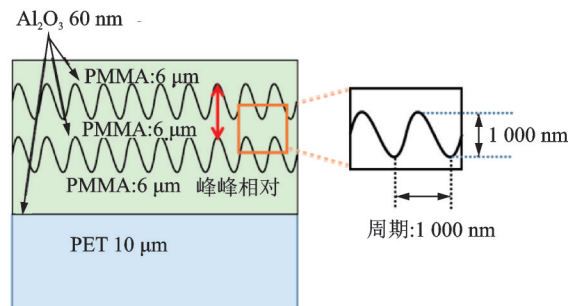
波浪形结构的周期对有机/无机交叠薄膜弯曲性能的影响如图 3(c)、(d)所示。固定波浪形周期为 600 nm,使波浪形结构深度从 400 nm 扫描至 2 000 nm,其中波浪形深度指波浪形波峰至波谷的垂直距离。当波浪形深度从 400 nm 增加至 600 nm 时,薄膜内的最大应力下降,当波浪形结构的深度在 600 nm 到 1 600 nm 之间时,薄膜弯曲性能趋于稳定。直到深度超过 1 600 nm 时,最大应力才略微增长。因此当深度过大时,结构带来的最大应力减少作用就不再明显,原因与波浪形周期对交叠薄膜的影响类似。

2.3 有机层厚度对有机/无机交叠薄膜弯曲性能的影响

交叠薄膜中的有机层同样是影响薄膜弯曲性能的重要因素,适当的有机层厚度可以缓解无机薄膜的应力,提高薄膜的弯曲性能。为了研究 PMMA 有机层厚度对薄膜弯曲性能的影响,将波浪形周期、深度均固定为 1 000 nm,并设置交叠薄膜模型的长度为 150 μm 、弯曲量为 80 μm ,其余参数如表 1 所示。对比分析同一 PMMA 有机层厚度下,三堆叠平面结构与三堆叠波浪形结构的 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{PMMA}$ 交叠薄膜内部的最大应力,如图 4(a)所示。可以发现,对于三堆叠平面结构的 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{PMMA}$ 交叠薄膜,随着 PMMA 厚度从 1 μm 增加到 11 μm ,由于整个交叠薄膜的厚度增加,交叠薄膜的最大应力近似线性增加。对于三堆叠波浪形结构的 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{PMMA}$ 交叠薄膜,随着 PMMA 厚度增加,交叠薄膜的最大应力先减小后增加,当 PMMA 厚度接近 6 μm 时,三堆叠波浪形结构的 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{PMMA}$ 交叠薄膜具有最小的最大应力,两种薄膜内的最大应力相差最大。说明有机层解耦应力的能力也会在一定范围内有比较好的效果。此时波浪形结构能够降低的交叠薄膜最大应力最



(a) PMMA 厚度与最大应力关系图



(b) 优化后的模型参数示意图

图 4 波浪形结构的 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{PMMA}$ 交叠薄膜优化Fig. 4 Optimization of $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{PMMA}$ overlapping thin films with wavy structure

多,达到73.16%。综合以上的仿真结果,可以得到最优的三堆叠波浪形 Al₂O₃/PMMA 交叠薄膜,周期、深度和有机层厚度分别为1 000 nm、1 000 nm、6 μm,如图4(b)所示。

3 结 论

文章以 Al₂O₃/PMMA 交叠薄膜为例,在其界面引入波浪形结构,通过增加 Al₂O₃在弯曲方向的实际长度改善其力学性能。采用有限元仿真方法对 Al₂O₃/PMMA 交叠薄膜结构进行建模,对波浪形结构形貌、周期、深度和 PMMA 厚度等参数进行优化。结果表明,波浪形界面结构能较大程度提高交叠薄膜的弯曲性能,最大应力值降低了50%以上。当波浪形结构的周期在500 nm~1 500 nm,深度在600 nm~1 600 nm,有机层 PMMA 厚度为6 μm时,交叠薄膜具有较好的弯曲性能,相比于没有引入界面结构的交叠薄膜,同等条件下产生的最大应力下降超过65%,有效提升了封装薄膜的弯曲性能。

参 考 文 献

- [1] Tang C W, VanSlyke S A. Organic electroluminescent diodes [J]. *Applied Physics Letters*, 1987, 51(12): 913-915.
- [2] Liu Y F, Feng J, Bi Y G, et al. Recent developments in flexible organic light-emitting devices[J]. *Advanced Materials Technologies*, 2019, 4(1): 1800371.
- [3] Park J S, Chae H, Chung H K, et al. Thin film encapsulation for flexible AM-OLED: A review [J]. *Semiconductor Science and Technology*, 2011, 26(3): 034001.
- [4] Kim G H, Oh J, Yang Y S, et al. Lamination process encapsulation for longevity of plastic-based organic light-emitting devices[J]. *Thin Solid Films*, 2004, 467(1): 1-3.
- [5] Lewis J. Material challenge for flexible organic devices[J]. *Materials Today*, 2006, 9(4): 38-45.
- [6] Logothetidis S. Flexible organic electronic devices: Materials, process and applications [J]. *Materials Science and Engineering: B*, 2008, 152(1): 96-104.
- [7] 刘 阳,张彬祥,黄楚佳. 柔性 OLED 薄膜封装技术分析[J]. *光电子技术*, 2017, 37(2): 139-145.
- [8] Yuan H, Li Q, Yan W, et al. A novel and efficient technology of depositing Al₂O₃ film for OLEDs thin film encapsulation[J]. *Vacuum*, 2022, 196: 110741.
- [9] Park J, Seth J, Cho S, et al. Hybrid multilayered films comprising organic monolayers and inorganic nanolayers for excellent flexible encapsulation films [J]. *Applied Surface Science*, 2020, 502: 144109.
- [10] Graff G L, Williford R E, Burrows P E. Mechanisms of vapor permeation through multilayer barrier films: Lag time versus equilibrium permeation [J]. *Journal of Applied Physics*, 2004, 96(4): 1840-1849.
- [11] 彭 荣,翁雅恋,周雄图,等. 柔性金属膜封装器件的水汽阻隔性能研究[J]. *光电子·激光*, 2018, 29(2): 118-122.
- [12] Kang K S, Jeong S Y, Jeong E G, et al. Reliable high temperature, high humidity flexible thin film encapsulation using Al₂O₃/MgO nanolaminates for flexible OLEDs [J]. *Nano Research*, 2020, 13(10): 2716-2725.
- [13] Sun F, Chen G, Zhou X, et al. Effects of embedded SiO₂ nanoparticles on the moisture barrier performance of inorganic/organic laminates [J]. *Journal of Materials Science: Materials in Electronics*, 2019, 30(24): 21089-21095.
- [14] Lee L, Kwan H Y, Jung J W, et al. Ultra gas-proof polymer hybrid thin layer [J]. *Nano Letters*, 2018, 18(9): 5461-5466.
- [15] Chen G, Weng Y, Wang W, et al. Spontaneous formation of random wrinkles by atomic layer infiltration for anticounterfeiting [J]. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 2021, 13(23): 27548-27556.
- [16] Han Y C, Jeong E G, Kim H, et al. Reliable thin-film encapsulation of flexible OLEDs and enhancing their bending characteristics through mechanical analysis [J]. *RSC Advances*, 2016, 6(47): 40835-40843.
- [17] Xue Z, Song H, Rogers J A, et al. Mechanically-guided structural designs in stretchable inorganic electronics [J]. *Advanced Materials*, 2020, 32(15): 1902254.
- [18] Shabrov S, Litvinov D. Adaptation of the finite element method for a mathematical model on a geometric graph [C]. *Journal of Physics: Conference Series*. IPO Publishing, Voronezh, Russia, 2021, 1902(1): 012087.
- [19] Degryse D, Vandeveld B, Beyne E. Mechanical FEM simulation of bonding process on Cu Low K wafers [J]. *IEEE Transactions on Components and Packaging Technologies*, 2004, 27(4): 643-650.
- [20] Song W J, Yoo S, Song G, et al. Recent progress in stretchable batteries for wearable electronics [J]. *Batteries & Supercaps*, 2019, 2(3): 181-199.
- [21] Münzenrieder N, Cantarella G, Vogt C, et al. Stretchable and conformable oxide thin-film electronics [J]. *Advanced Electronic Materials*, 2015, 1(3): 1400038.
- [22] Xue Z, Song H, Rogers J A, et al. Mechanically-guided structural designs in stretchable inorganic electronics [J]. *Advanced Materials*, 2020, 32(15): 1902254.
- [23] Yin L, Lv J, Wang J. Structural innovations in printed, flexible, and stretchable electronics [J]. *Advanced Materials Technologies*, 2020, 5(11): 2000694.
- [24] 常若菲,冯 雪,陈伟球,等. 可延展柔性无机电子器件的结构设计力学 [J]. *科学通报*, 2015, 60(22): 2079-2090.