

行政院國家科學委員會補助專題研究計畫 成果報告
 期中進度報告

以奈米壓印設計製作具光子晶體之高效能暨
高指向性的發光二極體

計畫類別： 個別型計畫 整合型計畫
計畫編號：NSC 97-2221-E-009-057-MY3
執行期間： 97年08月01日至 100年07月31日

計畫主持人：趙昌博 國立交通大學 電機與控制工程學系
計畫參與人員：高永原 博士生 國立交通大學 電機與控制工程學系
張瑞心 碩士生 國立交通大學 電機與控制工程學系
蔡哲弘 博士生 國立交通大學 電機與控制工程學系

成果報告類型(依經費核定清單規定繳交)： 精簡報告 完整報告

本成果報告包括以下應繳交之附件：

- 赴國外出差或研習心得報告一份
- 赴大陸地區出差或研習心得報告一份
- 出席國際學術會議心得報告及發表之論文各一份
- 國際合作研究計畫國外研究報告書一份

處理方式：除產學合作研究計畫、提升產業技術及人才培育研究計畫、列管計畫及下列情形者外，得立即公開查詢

涉及專利或其他智慧財產權， 一年 二年後可公開查詢

執行單位：

中 華 民 國 九 十 九 年 五 月 三 十 日

行政院國家科學委員會專題研究計畫期中報告

子計畫二-以奈米壓印設計製作具光子晶體之高效能暨高指向性的發光二極體

Preparation of NSC Project Reports

計畫編號：NSC 97-2221-E-009-057-MY3

執行期限：97 年 08 月 01 日至 100 年 07 月 31 日

主持人：趙昌博 國立交通大學 電機與控制工程學系

一、中文摘要

本計畫第二年目標在於經由側壁反射結構來增加有機多分子發光二極體 (PLEDs) 的取光效率。根據有限時域差分法模擬軟體 FDTD Solution 之計算結果，不同角度之側壁反射 (sidewall reflectors) 結構能增加 PLEDs 的取光效率。最後我們找到在側壁之角度為 35° 的情況下，取光效率能增加最多。跟不具有側壁反射 (non-sidewall reflectors) 結構之 PLEDs 相比較，能提升約 1.5%。

關鍵詞：有機多分子發光二極體、取光效率、側壁

Abstract

The objective of this study is to enhance extraction of light emission from polymer light-emitting diodes (PLEDs) via structure of sidewall reflectors. FDTD Solution simulation results show that the light extraction efficient (LEE) of PLEDs can be increased, depending on different angle of mesa sidewalls. Finally, at sidewall angle of 35° , the PLEDs show an enhancement of LEE by 1.5%, as compared with non-sidewall PLEDs.

Keywords: Polymer light-emitting diodes, Light extraction efficiency, Sidewall

二、緣由與目的

目前全球 LED 業者都視發光二極體為研發重點，因為發光二極體具有多項優

點，例如體積小、壽命長、反應速度快、指向性高等等，其中白光二極體的應用更是代替日常生活的照明設備及顯示器的背光元件，更加上顯示器背光模組元件最需要的是亮度，這是所有發光二極體研究的一個重點，綜合以上所述，這些跡象都直接指出當發光材料選定後，LED 的光取出效率問題就變成最重要的討論重點。

在增加 LED 發光效率方面，除了利用光子晶體 (光子能隙結構晶體) 的概念之外，還可以使用側壁結構來提升 LED 的取光效率 [1-5]。所以我們將側壁反射結構應用在 PLEDs 上 (如圖一)，其中 θ 為 sidewall 之角度，而側邊的反射結構為 Al 及 SiO_2 。利用此種結構，將側邊的光能量導至上方，就此來提升其取光效率。並且使用 FDTD 模擬軟體來驗證側壁反射結構是否有所功效。

三、計畫執行內容

3.1 有限時域差分法理論推導

有限時域差分法 (FDTD) [6] 是將馬克斯威爾 (Maxwell) 方程式的微分式離散化後，採跳步 (leapfrog) 的方式，交互的計算電場跟磁場。因此，只要我們知道某一瞬間電場磁場的分佈情形，以及解析區域當中各位置介質材料的各項參數，我們便可經由馬克斯威爾方程式所改寫成的 FDTD，求出下一瞬間的電場磁場分佈。根據 Yee 解析法的基本概念，如圖二所示。首先必須將包含有波源、散射體的解析空間劃分成許多小區域，每個小區域稱為一個單胞 (cell)。若切割方式為沿著 x 軸、y 軸、z 軸每固定距離作切割，則每

個單胞會有六個切面及八個格子點。然後再針對每個單胞求出其所對應的馬克斯威爾方程式的微分形式。Yee 解析法的 FDTD 推導過程可分成以下三個步驟：

1. 差分法則定義。
2. 電磁場的時間差分化。
3. 電磁場的空間差分化。

將電磁場的時間座標藉由取樣而離散化，又因為電磁波是電場、磁場交互產生的，我們可以人為的定義電場之取樣時間為 $t = (n-1)\Delta t$ 、 $n\Delta t$ 、 $(n+1)\Delta t$ 等等，而磁場的取樣時間則為 $t = (n-1/2)\Delta t$ 、 $(n+1/2)\Delta t$ 。FDTD 計算時，電場 E^n 可由 E^{n-1} 和 $H^{n-1/2}$ 來求得，磁場 $H^{n+1/2}$ 則可以 $H^{n-1/2}$ 和 E^n 來加以計算。推導過程由馬克斯威爾方程式開始(此處假設空間電流密度 $J=0$)：

$$\frac{\partial \vec{E}}{\partial t} = -\frac{\sigma}{\varepsilon} \vec{E} + \frac{1}{\varepsilon} \nabla \times \vec{H} \quad (1)$$

$$\frac{\partial \vec{H}}{\partial t} = -\frac{1}{\mu} \nabla \times \vec{E} \quad (2)$$

其中 μ 、 ε 、 σ 分別為導磁率、介電常數及導電率。現將馬克斯威爾方程式等號左邊的時間微分項改寫成差分形式：

$$\left. \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} \right|_{t=(n-\frac{1}{2})\Delta t} = -\frac{\sigma}{\varepsilon} \vec{E}^{n-\frac{1}{2}} + \frac{1}{\varepsilon} \nabla \times \vec{H}^{n-\frac{1}{2}} \quad (3)$$

$$\left. \frac{\partial \vec{H}}{\partial t} \right|_{t=n\Delta t} = -\frac{1}{\mu} \nabla \times \vec{E}^n \quad (4)$$

(Eq.3)當中， E^n 是我們想要的「下一瞬間電場」，可由已知的「前一瞬間電場 (E^{n-1})、磁場 ($H^{n-1/2}$)」計算得到。值得注意的是等號右邊的 $E^{n-1/2}$ 並不在我們定義好的電場離散時間座標上，因此必須取近似值來進行運算。同樣道理，(Eq.4)當中， $H^{n+1/2}$ 是我們想要的「下一瞬間磁場」， E^n 和 $H^{n-1/2}$ 則為已知的「前一瞬間電場、磁場」。重新整理後，我們得到：

$$E^n = \frac{1 - \frac{\partial \Delta t}{2\varepsilon}}{1 + \frac{\partial \Delta t}{2\varepsilon}} E^{n-1} + \frac{\frac{\Delta t}{\varepsilon}}{1 + \frac{\partial \Delta t}{2\varepsilon}} \nabla \times H^{n-\frac{1}{2}} \quad (5)$$

$$H^{n+\frac{1}{2}} = H^{n-\frac{1}{2}} - \frac{\Delta t}{\mu} \nabla \times E^n \quad (6)$$

再來將空間微分項改寫成差分形式，首先必須對取樣的方式作定義。根據 Yee 的單胞上電場磁場配置圖如圖三，電場的取樣位置在單胞邊線上(橘色)，也就是每

兩個格子點的連線中心位置，而磁場的取樣位置則位於每個面的幾何中心(綠色)，彼此交錯。箭頭方向為正。如此一來，(Eq.6)等號右邊第二項可改表示成：

$$\nabla \times \vec{H} = \vec{i} \left(\frac{\partial H_z}{\partial y} - \frac{\partial H_y}{\partial z} \right) + \vec{j} \left(\frac{\partial H_x}{\partial z} - \frac{\partial H_z}{\partial x} \right) + \vec{k} \left(\frac{\partial H_y}{\partial x} - \frac{\partial H_x}{\partial y} \right) \quad (7)$$

其餘各項依此類推，且若假設解析區域導電率 $\sigma=0$ ，並將介電常數 ε 改以介電張量(dielectric tensor)的矩陣形式表示，(Eq. 5)、(Eq. 6)可重新整理如下：

$$\begin{bmatrix} E_x^n \\ E_y^n \\ E_z^n \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} E_x^{n-1} \\ E_y^{n-1} \\ E_z^{n-1} \end{bmatrix} + \frac{\Delta t}{\varepsilon_0} \begin{bmatrix} \varepsilon_{11} & \varepsilon_{12} & \varepsilon_{13} \\ \varepsilon_{21} & \varepsilon_{22} & \varepsilon_{23} \\ \varepsilon_{31} & \varepsilon_{32} & \varepsilon_{33} \end{bmatrix}^{-1} * \left\{ \begin{array}{l} \frac{1}{\Delta y} \left\{ H_z^{n-\frac{1}{2}}(i+\frac{1}{2}, j+\frac{1}{2}, k) - H_z^{n-\frac{1}{2}}(i+\frac{1}{2}, j-\frac{1}{2}, k) \right\} \\ \frac{1}{\Delta z} \left\{ H_x^{n-\frac{1}{2}}(i, j+\frac{1}{2}, k+\frac{1}{2}) - H_x^{n-\frac{1}{2}}(i, j+\frac{1}{2}, k-\frac{1}{2}) \right\} \\ \frac{1}{\Delta x} \left\{ H_y^{n-\frac{1}{2}}(i+\frac{1}{2}, j, k+\frac{1}{2}) - H_y^{n-\frac{1}{2}}(i-\frac{1}{2}, j, k+\frac{1}{2}) \right\} \end{array} \right\} - \left\{ \begin{array}{l} \frac{1}{\Delta z} \left\{ H_y^{n-\frac{1}{2}}(i+\frac{1}{2}, j, k+\frac{1}{2}) - H_y^{n-\frac{1}{2}}(i+\frac{1}{2}, j, k-\frac{1}{2}) \right\} \\ \frac{1}{\Delta x} \left\{ H_z^{n-\frac{1}{2}}(i+\frac{1}{2}, j+\frac{1}{2}, k) - H_z^{n-\frac{1}{2}}(i-\frac{1}{2}, j+\frac{1}{2}, k) \right\} \\ \frac{1}{\Delta y} \left\{ H_x^{n-\frac{1}{2}}(i, j+\frac{1}{2}, k+\frac{1}{2}) - H_x^{n-\frac{1}{2}}(i, j-\frac{1}{2}, k+\frac{1}{2}) \right\} \end{array} \right\} \quad (8)$$

$$\begin{bmatrix} H_x^{n+\frac{1}{2}} \\ H_y^{n+\frac{1}{2}} \\ H_z^{n+\frac{1}{2}} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} H_x^{n-\frac{1}{2}} \\ H_y^{n-\frac{1}{2}} \\ H_z^{n-\frac{1}{2}} \end{bmatrix} + \frac{\Delta t}{\varepsilon_0} * \left\{ \begin{array}{l} \frac{1}{\Delta y} \left\{ E_z^n(i, j, k+\frac{1}{2}) - E_z^n(i, j-1, k+\frac{1}{2}) \right\} \\ \frac{1}{\Delta z} \left\{ E_x^n(i+\frac{1}{2}, j, k) - E_x^n(i+\frac{1}{2}, j, k-1) \right\} \\ \frac{1}{\Delta x} \left\{ E_y^n(i, j+\frac{1}{2}, k) - E_y^n(i-1, j+\frac{1}{2}, k) \right\} \end{array} \right\} - \left\{ \begin{array}{l} \frac{1}{\Delta z} \left\{ E_y^n(i, j+\frac{1}{2}, k) - E_y^n(i, j+\frac{1}{2}, k-1) \right\} \\ \frac{1}{\Delta x} \left\{ E_x^n(i, j, k+\frac{1}{2}) - E_x^n(i-1, j, k+\frac{1}{2}) \right\} \\ \frac{1}{\Delta y} \left\{ E_x^n(i+\frac{1}{2}, j, k) - E_x^n(i+\frac{1}{2}, j-1, k) \right\} \end{array} \right\} \quad (9)$$

3.2 PLED 製程

以下將說明 PLED 的製程步驟[7]：第一步先針對 ITO 玻璃基板做蝕刻的動作，我們先清洗 ITO 玻璃基板，再來貼上負光阻並以 UV 光曝光、顯影，最後再蝕刻出我們要的圖案來當作陽極，如圖四(a)所示。第二步將約 40 nm 厚的 PEDOT

(poly(3,4-ethylene dioxy thiophene))作為電洞傳導層，以旋轉塗布的方式成模在 ITO 玻璃基板上，如圖四(b)所示。第三步我們將有機聚合物 Ir(mppy)₃ (Tris[2-(p-tolyl)pyridine]iridium(III))作為發光材料，其發光波長約為 530 nm。同樣利用旋轉塗布的方式成模在 PEDOT 層上，其厚度約為 62 nm，如圖四(c)所示。最後將 1000 nm 厚的鋁蒸鍍在聚合物層上，用來當作陰極，如圖四(d)所示。以上製程技術的指導與實驗地方皆由交通大學物理研究所孟心飛老師實驗室所提供。

3.3 模擬與結果

我們使用有限時域差分法模擬軟體 FDTD Solution 來計算具有側壁反射結構有機發光二極體之取光效率，主要步驟可分為：

- (1)建立具側壁反射結構之 PLED 模型。
- (2)定義出 FDTD 模擬區域，其中包括設定 perfectly matched layer (PML) 邊界條件。
- (3)設定模擬光源，這裡所使用的光源為 dipole source。
- (4)設定 monitor 於 PLED 模型之周圍來計算光能量。

完成上述步驟即可進行模擬，我們模擬各種不同角度之 sidewall reflectors 對 PLEDs 的影響，並計算其取光效率。就 PLEDs 的取光效率 η_{ext} 及內部量子效率 η_{in} ，跟其外部量子效率 η_{ex} 息息相關，關係式如方程式(10)所示：

$$\eta_{ex} = \eta_{in} \times \eta_{ext} \quad (10)$$

而在模擬的過程中，我們假設 PLEDs 的上部出光能量除以總出光能量為其取光效率。所模擬 sidewall 角度與取光效率的結果如表一所示，再將表中的資料利用 MATLAB 繪製關係圖，如圖五。我們發現在 35° 的情況下，有最好的取光效率，其值約為 21.7%。而不具有 sidewall reflectors 的 PLEDs，也就是角度為 90° 時，取光效率為 20.2%。另一方面，我們從遠場分布圖來看，也可以清楚看到 sidewall reflectors 對 PLEDs 的影響，如圖六。其中顏色表示光能量強度，而圓圈表示不同觀測角度。

四、結論

我們利用側壁反射結構來增加 PLEDs 的取光效率，再加上使用有限時域差分法來進行光學模擬與理論推導，並找到 sidewall reflectors 之最佳角度為 35°。最後根據模擬結果，跟 non-sidewall reflectors 結構之 PLEDs 相比較，具有 sidewall reflectors 能提升 PLEDs 之取光效率約 1.5%。

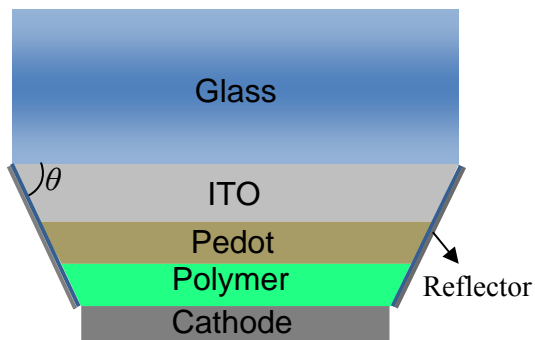
五、成果自評

本計畫在第二年度使用 FDTD 模擬軟體，成功找出提升 PLEDs 取光效率之 sidewall reflectors 的最佳化角度。但由於 PLEDs 的結構已經改變，若要搭配光子晶體及 sidewall reflectors 來提升取光效率，可能需要重新模擬計算，因為兩者的關係是相依的。所以在未來，會針對光子晶體尺寸及 sidewall reflectors 角度做最佳化。之後會以目前 PLED 製程的材料及厚度做為基礎，並加上具有 sidewall reflectors 及光子晶體的結構。而利用奈米壓印製作光子晶體所需的模具，我們請清華大學動力機械工程學系的傅建中老師幫忙製作。根據圖七顯示，已經能夠製作出光子晶體尺寸大小的程度，目前正在做最佳化來減少誤差。因此等到模具完成，即可利用奈米壓印來製作光子晶體。

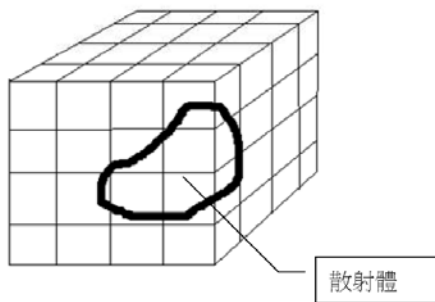
六、參考文獻

- [1] C. S. Chang, S. J. Chang, Y. K. Su, C. T. Lee, Y. C. Lin, W. C. Lai, S. C. Shei, J. C. Ke, and H. M. Lo, "Nitride-based LEDs with textured side walls," IEEE Photon. Technol. Lett., vol. 16, no. 3, pp. 750–752, Mar. 2004.
- [2] C. F. Lin, Z. J. Yang, J. H. Zheng, and J. J. Dai, "Enhanced light output in nitride-based light-emitting diodes by roughening the mesa sidewall," IEEE Photon. Technol. Lett., vol. 17, no. 10, pp. 2038–2040, Oct. 2005.
- [3] H.-W. Huang, H. C. Kuo, J. T. Chu, C. F. Lai, C. C. Kao, T. C. Lu, S. C. Wang, R. J. Tsai, C. C. Yu, and C. F. Lin, "Nitride-based LEDs with nano-scale textured sidewalls using

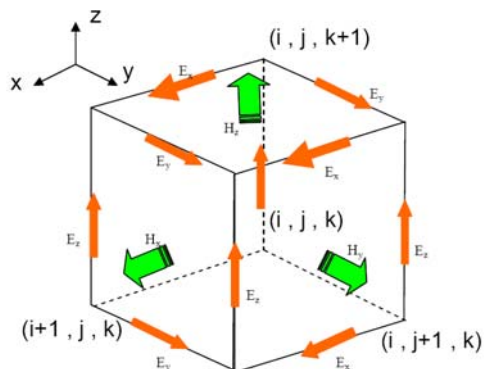
- natural lithography,” *Nanotechnology*, vol. 17, no. 12, pp. 2998–3001, Jun. 28, 2006.
- [4] H.-W. Huang, C. F. Lai, W. C. Wang, T. C. Lu, H. C. Kuo, S. C. Wang, R. J. Tsai, and C. C. Yu, “Efficiency enhancement of gan-based power-chip LEDs with sidewall roughness by natural lithography,” *Electrochem. Solid-State Lett.*, vol. 10, pp. H59–H62, 2007.
- [5] H. Kim, K. H. Baik, J. Cho, K.-K. Kim, S.-N. Lee, C. Sone, Y. Park, and T.-Y. Seong, “Enhanced light output of GaN-based light-emitting diodes by using omnidirectional sidewall reflectors,” *IEEE Photon. Technol. Lett.*, vol. 19, no. 19, pp. 1562–1564, Oct. 2007.
- [6] A. Taflove and S. C. Hagness, *Computational Electro-dynamics: the finite-difference time-domain method*, Artech House, orwood, MA, 2nd ed., 2000.
- [7] 林世昌, “共軛高分子發光二極體之多層製作及白光元件設計”, 交通大學物理研究所碩士論文。(2005)



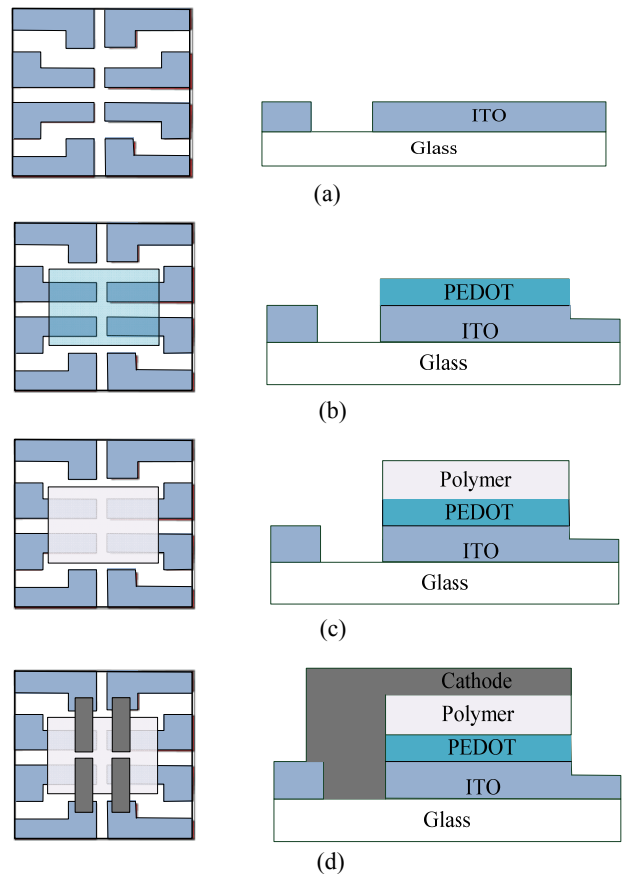
圖一、具有側壁反射結構之 PLED



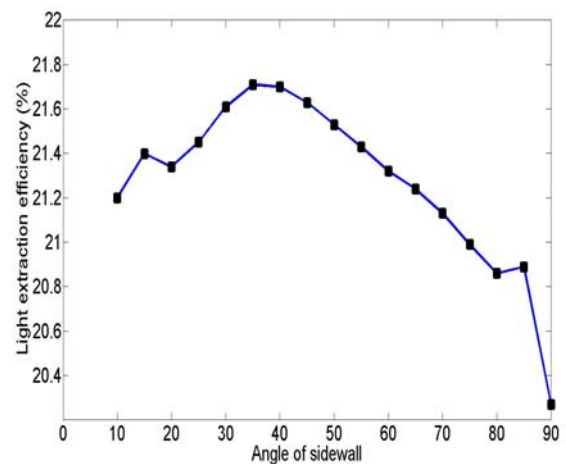
圖二、Yee 解析區域分割示意圖



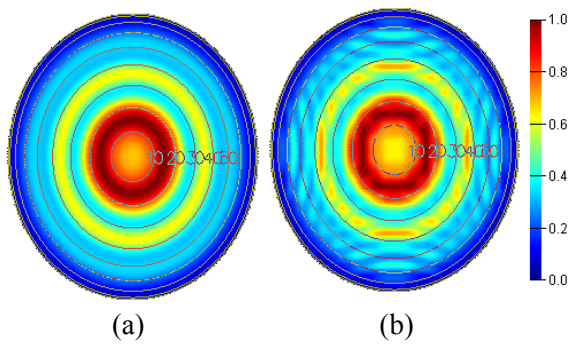
圖三、Yee 的單胞上電場磁場配置圖



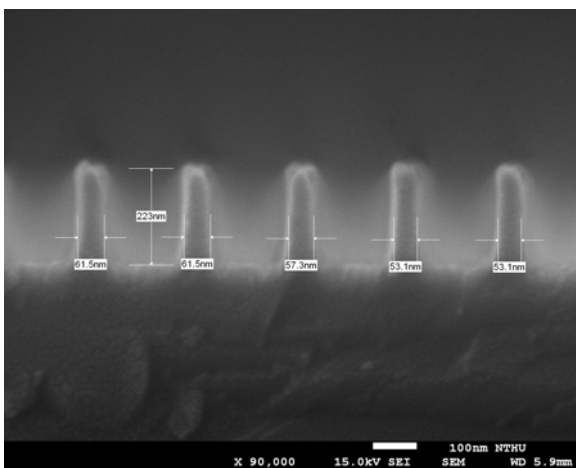
圖四、(a) 圖樣化之 ITO 玻璃基板; (b) 圖樣化 ITO 上塗佈 PEDOT 示意圖; (c) 在 PEDOT 上塗佈有機層示意圖 (d) 蒸鍍鋁電極後之示意圖



圖五、不同 Sidewall 角度與 LEE 之關係圖



圖六、遠場亮度分布圖 (a)不具有 sidewall reflectors; (b) 具有 35° sidewall reflectors



圖七、模具之 SEM 圖

表一、Sidewall 角度與 LEE 之關係

Angle of sidewall θ (°)	LEE(%)
10	21.20
15	21.40
20	21.34
25	21.45
30	21.61
35	21.71
40	21.70
45	21.63
50	21.53
55	21.43
60	21.32
65	21.24
70	21.13
75	20.99
80	20.86
85	20.89
90	20.27

可供推廣之研發成果資料表

可申請專利

可技術移轉

日期：99年05月30日

<p>國科會補助計畫</p>	<p>計畫名稱：以奈米壓印設計製作具光子晶體之高效能暨高指向性的發光二極體 計畫主持人：趙昌博 計畫編號：NSC 97-2221-E-009-057-MY3 學門領域：機械工程技術</p>
<p>技術/創作名稱</p>	<p>具最佳化結構之高效能有機發光二極體</p>
<p>發明人/創作人</p>	<p>趙昌博</p>
<p>技術說明</p>	<p>中文： 利用基因演算法將光子晶體的排列方式來找出最佳的周期及半徑，並且搭配最佳化之側壁反射結構角度來增加整體的取光效率。而有機發光二極體的好處在於低驅動電壓、寬視角，甚至可應用在可撓式面板上。</p> <p>英文： Genetic Algorithm is employed to search the optimal photonic crystal period and radius. We also used optimal angle of sidewall reflectors to enhance the light extract efficiency of PLEDs. PLEDs have advantages such as a low driving voltage and wide viewing angle. Even, they can be used for flexible displays.</p>
<p>可利用之產業 及 可開發之產品</p>	<p>可利用之產業：光電產業。 可開發之產品：高效能省電發光二極體、可撓式 PLED 面板及光感測器。</p>
<p>技術特點</p>	<p>可針對不同製程或結構之 PLED，並利用基因演算法作光子晶體與側壁反射參數最佳化以提升其取光效率</p>
<p>推廣及運用的價值</p>	<p>本計畫之研發成果可與光電領域作整合，亦可與面板產業及光感測器之產品作一合作。</p>

※ 1. 每項研發成果請填寫一式二份，一份隨成果報告送繳本會，一份送 貴單位研發成果推廣單位（如技術移轉中心）。

※ 2. 本項研發成果若尚未申請專利，請勿揭露可申請專利之主要內容。

※ 3. 本表若不敷使用，請自行影印使用。