

Année 2017

N° attribué par la bibliothèque

# THESE

Pour obtenir le grade de

**DOCTEUR EN SCIENCE DE L'UNIVERSITE PARIS 13**

Discipline : Physique

Par

**CHIME Alex Chamberlain**

**Etude théorique et expérimentale  
de micro-OLEDs rapides sur électrodes coplanaires  
en régime d'impulsions à haute densité de courant**

Le 20 décembre 2017

Devant le jury composé de :

<b>Philippe BENECH</b>	Professeur, Université Grenoble Alpes	Rapporteur
<b>Johann BOUCLE</b>	Maître de conférence / HDR, Université de Limoges	Rapporteur
<b>Yacinthe RANDRIAMAHAZAKA</b>	Professeur, Université Paris 7	Examineur
<b>Alexis FISCHER</b>	Professeur, Université Paris 13	Co-Directeur de thèse
<b>Homère NKAWO</b>	Maître de conférence / HDR, Université Paris 13	Co-Directeur de thèse
<b>Mahmoud CHAKAROUN</b>	Maître de conférence, Université Paris 13	Encadrant

## REMERCIEMENTS

Ce travail a été réalisé au sein du Laboratoire de Physique des Lasers (LPL), CNRS – UMR 7538, Université Paris 13. Toute la partie expérimentale a été menée au sein de la Centrale de Proximité en Nanotechnologie de Paris Nord (CPN2).

*J'adresse mes remerciements à Monsieur Olivier GORCEIX, Professeur à l'Université Paris 13 et Directeur du LPL pour m'avoir accueilli au sein du laboratoire.*

*Je remercie infiniment Monsieur Alexis FISCHER, Professeur à l' Université Paris 13 et Responsable de la CPN2 pour l'environnement de travail qu'il a su mettre à la disposition de toute la partie expérimentale de ce travail.*

Je suis extrêmement reconnaissant de l'encadrement reçu tout au long de ce travail et de la disponibilité de mes directeurs de thèse et encadrants.

*En premier lieu, je dois remercier Monsieur Homère NKWAWO, Maître de Conférence HDR à l'Université Paris 13, qui a été l'initiateur de ce projet. En me faisant entièrement confiance, il a su nouer le contact avec l'équipe PON du LPL afin de m'offrir l'opportunité d'effectuer ce travail de thèse. Merci de l'avoir co-dirigé. Merci d'avoir cru en moi. J'en suis infiniment reconnaissant.*

*Je voudrais ensuite remercier une fois de plus Monsieur Alexis FISCHER, co-directeur de cette thèse. Merci de m'avoir fait confiance. Avec beaucoup de patience et de méthode il m'a aidé à m'accrocher à ce sujet ; il a su me donner l'envie d'aller de l'avant malgré toutes les difficultés d'expérimentation, en restant ouvert à mes propositions d'idées. Merci pour tout son investissement, son soutien, son écoute, et sa très grande disponibilité pendant toutes ces années de thèse. Infiniment merci.*

*De nombreuses mesures de caractérisation des OLEDs n'auraient pas pu être menées dans des conditions et délais raisonnables sans l'automatisation des bancs de mesures. Je tiens ici à remercier chaleureusement Monsieur Min LEE, Maître de Conférence à l'Université Paris 13, qui a su m'initier dans l'écriture des scripts de pilotage automatique des équipements de laboratoires. Son aide m'a été d'une très grande utilité dans le processus d'acquisition et de sauvegarde des mesures de caractérisation.*

*Je voudrais également dire merci à Monsieur Mahmoud CHAKAROUN, Maître de Conférence à l'Université Paris 13, pour ses conseils et son appui à la conception des bancs de mesures, en particulier sur le montage et la calibration du banc optique. Merci pour les fructueuses discussions sur l'analyse des résultats.*

*Enfin, je voudrais dire sincèrement merci à Monsieur Souheil BENSMIDA de l'« University of Bristol », qui a fait de multiples déplacements à l'Université Paris 13 dans le cadre de ce travail pour partager avec moi son expérience en mesures RF. Son intuition et ses conseils ont permis de contourner de nombreuses difficultés de mesures de caractérisation de mes échantillons et d'en améliorer très significativement la qualité et les possibilités.*

Je remercie sincèrement les membres de mon jury. C'est un honneur pour moi d'avoir pu les intéresser à ce travail.

*Que Monsieur Philippe BENECH – Professeur à l'Université Grenoble Alpes, et Monsieur Johann BOUCLE – Maître de Conférence HDR à l'Université de Limoges, trouvent ici toute ma reconnaissance pour avoir accepté de rapporter mon mémoire de thèse. Merci pour le temps consacré à son examen, pour leurs critiques, leurs commentaires avisés, leurs conseils et leurs participations à mon jury.*

*Un merci particulier à Monsieur Yacinte RANDRIAMAHAZAKA, Professeur à l'Université Paris 7, pour m'avoir fait l'honneur de présider mon jury.*

Ma reconnaissance va également à l'endroit du personnel de la CPN2 (Salle blanche).

*Merci à Madame Jeanne SOLARD, Ingénieur Salle Blanche, pour toute son attention et sa disponibilité sans pareil. Avec professionnalisme, elle a su m'accompagner dès les premières heures dans mon immersion à l'environnement de travail en salle blanche et à la prise en main de multiples outils technologiques de micro fabrication.*

*Merci à Monsieur Dejan KOCIC, Technicien Salle Blanche, pour sa grande disponibilité et sa réactivité. Il s'est toujours montré disposé à filer un coup de main aussitôt qu'il est sollicité.*

Je voudrais remercier également tous les thésards de l'équipe aux côtés de qui j'ai « manipuler » pendant cette aventure. Je pense à Lei, Samira, Amadou , Sarah, ...

A l'endroit de l'administration et du personnel de mon institution, l'Université de Dschang.

*Je voudrais ici remercier le Directeur de l'IUT FOTSO Victor de Bandjoun en la personne de Monsieur Médard FOGUE, Professeur, pour tout son soutien.*

*Merci au Chef de Département GTR, Dr François KAPCHE pour avoir aménagé l'organisation des mes enseignements pendant ces années de thèse pour me permettre d'aller et venir en assurant au mieux mes obligations professionnelles.*

*Je pense tout particulièrement à mon collègue et ami Dr Alain DJIMELI, qui malgré sa haute charge de travail a pris sur lui d'assurer mes évaluations et les corrections de mes copies chaque fois qu'il a été sollicité. Merci pour son soutien sans faille et pour son amitié.*

Les mots ne seront jamais assez suffisants pour exprimer ma reconnaissance à l'endroit de la famille KATEU-KA TCHAKOUNTE qui a tout mis en œuvre pour m'accueillir, faciliter et agrémente mon séjour en France pendant ces années. Infiniment Merci à Blanchard et Sorelle.

A tous ceux qui ont cheminé avec moi par leur présence, leur générosité, leur accueil, leur amitié, leur affection, leur encouragement, ... Qu'ils trouvent dans ces quelques lignes l'expression de toute ma gratitude.

Enfin, que mon épouse, mes enfants, mes parents, qui ont dû supporter mes très longues périodes d'absence, trouvent dans ce travail le fruit des sacrifices consentis. Merci à toi Mymi, pour tout !

# SOMMAIRE

REMERCIEMENTS .....	ii
SOMMAIRE .....	iv
INTRODUCTION GENERALE .....	1
1. RAPPELS SUR L'OPTOÉLECTRONIQUE ORGANIQUE ET L'ÉLECTRONIQUE HYPERFRÉQUENCE ....	13
SOMMAIRE.....	13
INTRODUCTION .....	13
1.1. GENERALITES SUR LES SEMI-CONDUCTEURS ORGANIQUES.....	13
1.1.1. Structure moléculaire des matériaux organiques.....	13
1.1.1.1. Configuration électronique du carbone .....	13
1.1.1.2. Notion de conjugaison .....	15
1.1.1.3. Notion de bande d'énergie .....	15
1.1.1.4. Notion d'exciton.....	16
1.1.2. Propriétés optiques.....	17
1.1.3. Propriétés électriques .....	19
1.1.3.1. Modèle du piègeage multiple.....	20
1.1.3.2. Modèle du saut multiple.....	21
1.2. DIODE ELECTROLUMINESCENTE ORGANIQUE (OLED).....	21
1.2.1. Historique .....	21
1.2.2. Structure .....	21
1.2.3. Fonctionnement .....	22
1.2.3.1. Injection de porteurs de charges .....	23
1.2.3.1.1. Modèle de Richardson–Schottky : Injection thermoionique .....	24
1.2.3.1.2. Injection par effet tunnel .....	25
1.2.3.2. Transport de charges .....	25
1.2.3.2.1. Courant limité par la charge d'espace (Space Charge Limited Current, SCLC) .....	26
1.2.3.2.2. Modèle de Poole Frenkel.....	26
1.2.3.3. Recombinaison des porteurs de charges.....	26
1.2.3.3.1. Notion d'exciton.....	26
1.2.3.3.2. Modèle de recombinaison de Langevin : taux de recombinaison.....	27
1.2.3.3.3. Le rapport singulet/triplet .....	27
1.2.3.4. Mécanismes de transfert d'énergie.....	27
1.2.3.4.1. Transfert de FÖRSTER .....	28
1.2.3.4.2. Transfert de DEXTER.....	29
1.2.3.5. Désactivation de l'exciton.....	30
1.2.3.6. Durée de vie et rendement de fluorescence.....	30
1.3. RAPPELS SUR LES LIGNES DE TRANSMISSION.....	31
1.3.1. Ligne de transmission : définition.....	31
1.3.2. Modèle d'une ligne de transmission : paramètres primaires.....	31
1.3.3. Equation de propagation .....	33
1.3.4. Cas particulier du régime harmonique .....	34
1.3.4.1. Constante de propagation .....	34
1.3.4.2. Solution de l'équation de propagation .....	34
1.3.4.3. Impédance caractéristique d'une ligne .....	35
1.3.4.4. Réflexion sur la ligne.....	36
1.3.4.5. Coefficient de transmission.....	37
1.3.4.6. Puissance transportée par une ligne .....	37

1.3.4.7.	<i>Impédance à l'entrée d'une ligne</i> .....	37
1.3.4.8.	<i>Adaptation d'impédance</i> .....	38
1.3.5.	La ligne coplanaire.....	39
CONCLUSION .....		39
REFERENCES.....		40
2.	MODÈLE ÉLECTRIQUE D'UNE OLED EN RÉGIME D'EXCITATION ELECTRIQUE PAR IMPULSIONS .	43
SOMMAIRE.....		43
2.1.	MODELISATION ELECTRIQUE.....	43
2.1.1.	Modèle électrique équivalent en régime d'excitation tout ou rien.....	43
2.1.2.	Réponse à une excitation électrique quelconque.....	45
2.1.3.	Réponse à un échelon de tension.....	46
2.1.4.	Réponse à une impulsion rectangulaire .....	47
2.1.4.1.	<i>Analyse temporelle</i> .....	47
2.1.4.2.	<i>Aspect fréquentiel</i> .....	47
2.1.4.3.	<i>Synthèse</i> .....	48
2.1.5.	Problématique de la capacité .....	49
2.1.6.	Problématique de la résistance série .....	50
2.1.6.1.	<i>Disposition classique des électrodes</i> .....	50
2.1.6.2.	<i>Autre stratégie de réduction de résistance série : l'anode en « anse de panier »</i> .....	50
2.1.6.3.	<i>Métallisation</i> .....	51
2.1.7.	Problématique de la résistance dynamique.....	51
2.1.8.	Simulations numériques sur le modèle électrique .....	51
2.1.8.1.	<i>Présentation de différents scénarii</i> .....	51
2.1.8.2.	<i>Calcul numérique de la constante de temps de <math>\mu</math>-OLED</i> .....	52
2.1.8.3.	<i>Calcul numérique de la densité de courant utile</i> .....	52
2.1.8.4.	<i>Influence de la forme de la tension d'excitation</i> .....	54
2.2.	PROBLEMATIQUE DE HAUTE FREQUENCE : MODELISATION RF .....	55
2.2.1.	Réflexion sur une ligne.....	55
2.2.2.	Structuration des électrodes.....	56
2.2.2.1.	<i>Contrainte sur l'impédance caractéristique</i> .....	57
2.2.2.2.	<i>Contrainte sur la constante diélectrique effective</i> .....	58
2.2.3.	Simulation avec ADS.....	58
2.2.4.	Réalisation d'éléments passifs sur lignes CPW .....	59
CONCLUSION .....		61
RÉFÉRENCES.....		62
3.	FABRICATION ET CARACTÉRISATION DES COMPOSANTS.....	65
SOMMAIRE.....		65
3.1.	FABRICATION DES OLEDS .....	65
3.1.1.	Les exigences .....	65
3.1.2.	Substrats et types d'échantillons.....	65
3.1.3.	Les phases de fabrication .....	66
3.1.4.	Phase 1 : Structuration des électrodes.....	67
3.1.4.1.	<i>Le nettoyage</i> .....	67
3.1.4.2.	<i>Lithographie</i> .....	68
3.1.4.3.	<i>La gravure</i> .....	71
3.1.5.	Phase 2 : Métallisation des lignes.....	72
3.1.6.	Phase 3 : Dépôt de l'hétérostructure organique.....	73
3.1.6.1.	<i>L'empilement</i> .....	73
3.1.6.2.	<i>Evaporation sous vide</i> .....	75
3.1.6.3.	<i>Stockage, encapsulation</i> .....	77
3.2.	SYSTEME DE CARACTERISATIONS .....	78
3.2.1.	Station de mesure sous pointe .....	78

3.2.2.	Caractéristique JVL à bas niveau.....	79
3.2.3.	Mesures électrique et optique résolues en temps en régime impulsionnel.....	80
3.2.4.	Mesures d'impédance.....	80
3.2.5.	Mesure de spectre en continu.....	81
3.2.6.	Spectre résolu en temps en régime d'excitation impulsionnelle.....	81
3.3.	EXPLOITATION DES MESURES.....	82
3.3.1.	Extraction du modèle électrique de l'OLED.....	82
3.3.2.	Quantification de l'émission lumineuse.....	83
3.3.2.1.	<i>Principe de la mesure</i> .....	83
3.3.2.2.	<i>Bilan énergétique de la chaîne de mesure</i> .....	85
3.3.2.2.1.	<i>Emission interne</i> .....	86
3.3.2.2.2.	<i>Couplage externe (OLED / substrat / air)</i> .....	86
3.3.2.2.3.	<i>Pertes de Fresne</i> .....	87
3.3.2.2.4.	<i>Schéma de mesure n° 1 : couplage direct OLED/photodiode</i> .....	87
3.3.2.2.5.	<i>Schéma de mesure n° 2 : couplage OLED – fibre – photodiode</i> .....	88
3.3.2.2.6.	<i>Schémas de mesure 3 : couplage OLED – fibre – focalisation – photodiode</i> .....	91
3.3.2.2.7.	<i>Synthèse</i> .....	92
3.3.2.3.	<i>Etalonnage de la chaîne de mesure</i> .....	92
3.3.2.3.1.	<i>La source étalon et système de mesure calibrée</i> .....	93
3.3.2.3.2.	<i>Mesure de spectre et mesure en boîte noire</i> .....	93
3.3.2.3.3.	<i>Mesure sur la chaîne de mesure optique</i> .....	94
3.3.2.3.4.	<i>Synthèse et application numérique</i> .....	94
	CONCLUSION.....	95
	REFÉRENCES.....	96
4.	RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX ET DISCUSSIONS.....	97
	SOMMAIRE.....	97
	INTRODUCTION.....	97
4.1.	LA DEMARCHE SCIENTIFIQUE.....	97
4.2.	DESCRIPTIFS DES ECHANTILLONS REALISES.....	98
4.3.	QUALIFICATION DES ECHANTILLONS.....	99
4.3.1.	Mesure à l'analyseur de réseau.....	99
4.3.1.1.	<i>Impédance caractéristique des lignes réalisées</i> .....	100
4.3.1.2.	<i>Définition des plans de mesures d'impédances</i> .....	100
4.3.1.3.	<i>Résistance de charge intégrée</i> .....	101
4.3.1.4.	<i>Résistance série : contribution de la zone d'évidement autour de l'anode</i> .....	103
4.3.1.5.	<i>Capacité et résistance série (OLED + circuit)</i> .....	104
4.3.2.	Caractérisation d'OLED en régime continu : courbe IVL et spectre.....	105
4.4.	REPONSE ELECTRIQUE ET OPTIQUE EN REGIME D'IMPULSIONS.....	107
4.4.1.	Influence de la durée des impulsions.....	107
4.4.2.	Influence de l'amplitude des impulsions d'excitation.....	109
4.4.3.	Spectre optique résolu en temps.....	111
4.5.	VALIDATION DU MODELE.....	112
4.5.1.	Extrapolation de la résistance dynamique à faible tension.....	113
4.5.2.	Extrapolation de la résistance dynamique en régime d'impulsion.....	114
4.5.3.	Extraction du modèle électrique par identification « fit ».....	117
4.5.4.	Comparaison des 3 approches.....	117
4.5.5.	Ajustement du modèle électrique.....	118
4.5.6.	Densités de courant crêtes et intensités lumineuses crêtes.....	121
4.5.7.	Rendement quantique instantané.....	122
	CONCLUSION.....	123
	REFERENCES.....	126
	CONCLUSION ET PERSPECTIVES.....	127

<b>LE BILAN</b> .....	127
<b>LES PERSPECTIVES</b> .....	129
<b>ARTICLES, CONFERENCES, BREVETS</b> .....	131
<b>ARTICLES</b> .....	131
<b>CONFERENCES</b> .....	131
<b>BREVETS</b> .....	131
<b>ANNEXE : FICHE DE PROCEDURE DE GRAVURE DE L'ITO</b> .....	133
<b>A.1. IDENTIFICATION DE LA SURFACE METALLISEE</b> .....	133
<b>A.2. NETTOYAGE INITIAL</b> .....	133
<b>A.3. PHOTOLITHOGRAPHIE</b> .....	133
<b>A.3.1. Enrésinement</b> .....	133
<b>A.3.2. Insolation (Aligneur de masque MJB4)</b> .....	134
<b>A.3.3. Développement</b> .....	134
<b>A.4. GRAVURE (ICP)</b> .....	135
<b>LISTES DE FIGURES ET TABLEAUX</b> .....	136





## INTRODUCTION GENERALE

### LE CONTEXTE GENERAL

L'électronique organique est fondée sur les semi-conducteurs organiques c'est à dire des polymères ou des petites molécules organiques (monomères, dimères). Son histoire démarre en 1953 avec les travaux de Bernanose, de l'Université de Nancy, sur l'électroluminescence de l'acridine orange [1, 2] et la démonstration de l'électroluminescence dans un monocristal d'anthracène organique rapporté par Pope en 1963 [3]. A l'époque, il faut une tension d'excitation de plusieurs  $kV$  pour observer une émission dans un cristal de 5mm d'épaisseur. Il a fallut attendre plus de vingt ans pour qu'en 1987 Tang et Van Slyke démontre la première diode électroluminescente organique (OLED) bicouche à base de petites molécules en couche mince d'une centaine de nanomètres avec des tensions de quelques volts [4]. En 1990, la première OLED à base de polymère est développée par Burroughes et al. [5] et c'est le début de l'ascension pour ce nouveau champ de l'électronique.

Avec des processus de production économiques relativement simples, rapides, plus respectueux de l'environnement et une disponibilité presque illimitée de matières premières, cette nouvelle branche de l'électronique a connu un développement sans précédent ces dernières années, avec l'arrivée à maturité et la commercialisation des premiers composants telles que la diode électroluminescente organique (OLED) [4, 5], le transistor organique à effet de champ (OFET) [6-8], les cellules photovoltaïque organiques (OPV) [9, 10] et les capteurs biologiques [11]. L'engouement pour cette nouvelle classe de semi-conducteurs organiques est davantage stimulé par leurs applications potentielles. En raison de la qualité de leur émission lumineuse et de leur faible consommation d'énergie, les écrans à base d'OLED par exemple ont rapidement trouvé place dans les périphériques d'affichage tels que les téléviseurs et les téléphones mobiles [12-14] ou dans les dispositifs d'éclairage et la signalisation. D'autres applications comme le Li-Fi ou les transmissions optiques pourraient également s'inviter si des composants suffisamment rapides (opto-électronique organique rapide) sont développés

### LES VEROUS PHYSIQUES A LA DEMONSTRATION DE LA DIODE LASER ORGANIQUES

Les avancées remarquables en terme d'efficacité dans les OLEDs ainsi que les nombreux exemples de lasers organiques démontrés en pompage optiques [15] et basés sur les mêmes semi-conducteurs organiques permettent d'envisager la diode laser organique (OLD) – c'est à dire le laser organique en pompage électrique – qui a ce jour est le dernier composant

optoélectronique organique qui n'a pas été démontré. Plusieurs verrous physiques ont été identifiés [16-20] :

- les faibles facteurs de qualité des cavités lasers réalisées produisent des seuils laser élevés et placent les densités de courant équivalentes autour de quelques  $kA/cm^2$  ;
- les faibles densités de courant obtenues dans les hétéro structures organiques en excitation électrique qui se situent plutôt au niveau de quelques  $A/cm^2$  en régime continu ;
- les pertes optiques par l'annihilation singulet-triplet induites par le peuplement et l'accumulation d'excitons triplet.

Nous allons voir rapidement ces trois points qui dressent le cadre et structurent ce travail de thèse.

Considérons tout d'abord l'impact des facteurs de qualité des cavités laser sur les seuils. Les expériences de lasers organiques pompés optiquement, voir *Tableau 0.1*, demeurent les seuls auxquels nous pouvons nous référer puisque il n'y a, à ce jour, pas de laser organique pompé électriquement. Pour essayer de comparer ces expériences très diverses, le graphe de la Figure 0.1 en résume quelques unes dans une figure de mérite qui présente en fonction du facteur de qualité, les seuils équivalents en densité de courant. Les seuils laser ont été convertis en densités de courant équivalentes en utilisant la relation Eq. 0.1 [22, 23].

$$J_{th} = \frac{2n_{th} \times q}{\eta_{rad} \times \tau_{rad}} \quad \text{Eq. 0.1}$$

où  $n_{th}$  est la densité de photons de pompe au seuil laser,  $q$  est la charge électrique élémentaire,  $\eta_{rad}$  est le taux d'excitons radiatifs – soit 25% pour les singulets, et  $\tau_{rad}$  leur durée de vie (5ns pour le DCM [23, 24]).

Parmi toutes ces expériences, les seuils les plus bas ont été rapportés par Karnutsch [42] en 2006 avec  $J_{th1} = 28.8 A/cm^2$ , Granlund [34] en 1998 avec  $J_{th2} = 96 A/cm^2$ , Kozlov et al. en 2000 [35] avec  $J_{th3} = 160 A/cm^2$ , Gourdon [46] avec  $J_{th4} = 7.76 kA/cm^2$ .

Il faut noter que ces calculs sont réalisés en faisant l'hypothèse d'un rendement quantique interne égale au maximum théorique de 25%. En réalité, le rendement quantique d'une OLED est nettement plus faible, notamment lorsque la densité de courant augmente et peut diminuer à 1% voire 0.1% [48]. Dès lors, les plus faibles densités de courant équivalent aux seuils laser passent dans les plages  $0.7 \sim 4 kA/cm^2$  à 1% et  $7.2 \sim 40 kA/cm^2$  à 0.1% comme on peut le voir sur la *Figure 0.2*.

Tableau 0.1 : Quelques expériences de la littérature sur les lasers organiques en pompage optique : calcul de la densité de courant équivalent au seuil laser

Référence	Date	Groupe	Milieu à gain	Facteur de qualité	Seuil laser (J/cm <sup>2</sup> )	Courant (A/cm <sup>2</sup> )
[46]	1995	Maslyukow	///	100	$4,00 \times 10^{-3}$	$3,20 \times 10^{+6}$
[46]	1998	Forrest	///	420	$3,00 \times 10^{-4}$	$2,40 \times 10^{+5}$
[34]	1998	Granlund	///	120	$1,20 \times 10^{-7}$	$9,59 \times 10^{+1}$
[35]	1998	Kozlov	Alq3:DCM	///	$1,00 \times 10^{-6}$	$8,00 \times 10^{+2}$
[46]	1999	Meir	///	2100	$4,00 \times 10^{-5}$	$3,20 \times 10^{+4}$
[36]	2000	Riechel	///	1920	$3,15 \times 10^{-4}$	$2,52 \times 10^{+5}$
[37]	2000	Kozlov	Alq3:DCM	///	$2,00 \times 10^{-7}$	$1,60 \times 10^{+2}$
[46]	2005	Barnes	//	855	$5,00 \times 10^{-5}$	$4,00 \times 10^{+4}$
[39]	2005	Koschorreck	Alq3:DCM	4500	$2,00 \times 10^{-5}$	$1,60 \times 10^{+4}$
[40]	2005	Pisignano	T5oCx	///	$3,70 \times 10^{-5}$	$2,96 \times 10^{+4}$
[41]	2005	Rose	///	///	$4,00 \times 10^{-8}$	$3,20 \times 10^{+1}$
[46]	2006	Tsutsumi	///	2160	$1,30 \times 10^{-4}$	$1,04 \times 10^{+5}$
[42]	2006	Karnutsch	///	///	$3,60 \times 10^{-8}$	$2,88 \times 10^{+1}$
[44]	2009	Hirade	spiro-SBCz	///	$7,20 \times 10^{-7}$	$5,76 \times 10^{+2}$
[45]	2009	Xia	PCS:OA	///	$1,50 \times 10^{-7}$	$1,20 \times 10^{+2}$
[46]	2012	Gourdon	///	350	$9,70 \times 10^{-6}$	$7,76 \times 10^{+3}$

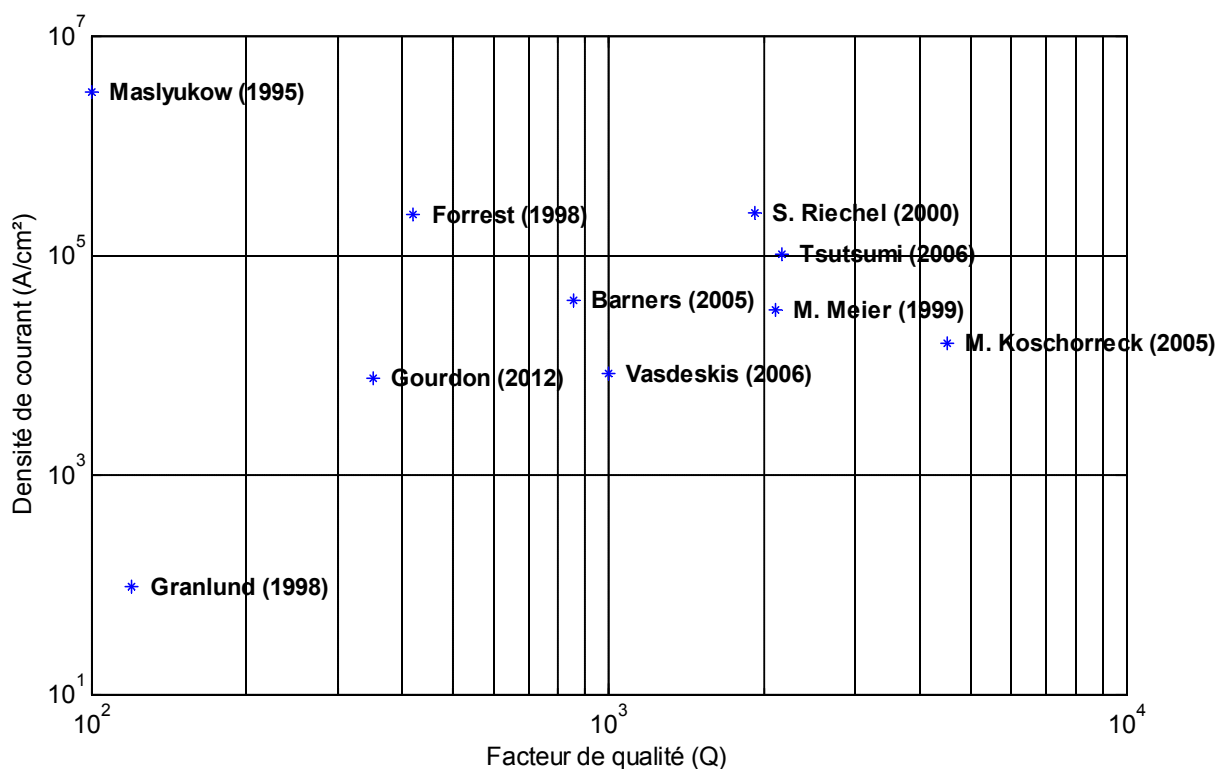


Figure 0.1 : Densité de courant équivalent au seuil laser en pompage optique et facteur de qualité pour différentes expériences de la littérature

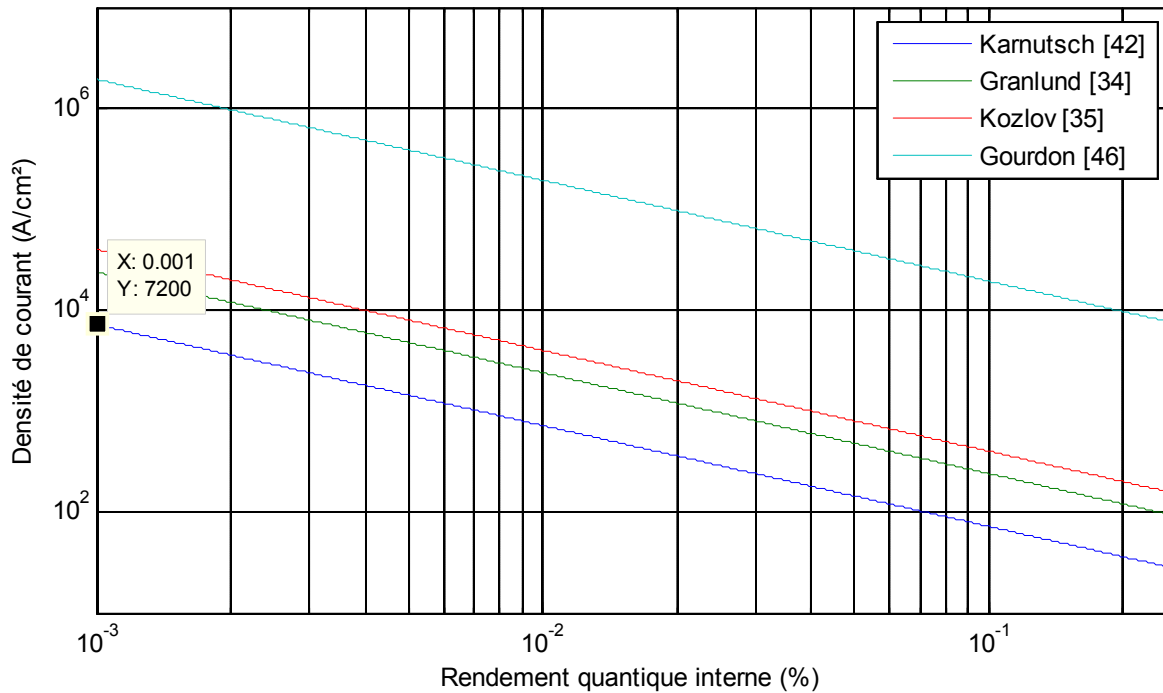


Figure 0.2 : Variations des seuils lasers les plus faibles avec le rendement quantique de l'OLED

Ces seuils laser équivalents sont à comparer aux densités de courant maximales que peuvent accepter les OLEDs à la limite de dégradation par effet thermique. En régime continu, elles sont typiquement de l'ordre de  $10$  à  $100 \text{ mA/cm}^2$ , et exceptionnellement en association avec des substrats possédant de bonnes propriétés de diffusion thermique comme le silicium on observe des densités de courant jusqu'à  $1 \text{ A/cm}^2$  [25, 26].

Au-delà de ces ordres de grandeur, l'application d'un régime d'excitation impulsionnelle s'impose [27]. Dans la littérature plusieurs études sur l'évolution des densités de courant limite en fonction des durées d'impulsions montrent une forte augmentation du courant de destruction en régime impulsionnel [28-33], voir *Tableau 0.2*. Les récentes avancées obtenues dans le cadre des travaux de thèse de Lei Zeng au sein de l'équipe PON ont permis d'exciter électriquement les diodes électroluminescentes organiques jusqu'à des densités de courant de  $3.6 \text{ kA/cm}^2$  [21]. On le doit entre autre à la réduction de la taille des OLEDs, et à l'excitation en régime d'impulsion, avec des durées d'impulsions courtes comprises entre  $30$  et  $50 \text{ ns}$ , un faible rapport cyclique, et une miniaturisation du circuit d'excitation de manière à mettre les composants électriques du circuit d'excitation au plus près de l'OLED pour atteindre une constante de temps électrique de l'ordre de  $10 \text{ ns}$ .

Tableau 0.2 : Densités de courant limite et durées d'impulsions pour quelques expériences de la littérature

Référence	Date	Groupe	Courant (A/cm <sup>2</sup> )	Luminance (x10 <sup>6</sup> cd/cm <sup>2</sup> )	Durée d'impulsion	Temps de montée
[28]	2016	Fischer (France)	3000	8	30ns	
[29]	2015	Adachi (Japon)	2800	///	5μs	23ns
[30]	2011	Leo (Allemagne)	800	///	50ns	10ns
[31]	2009	Forrest (USA)	40	///	700ns	
[32]	2005	Nakanotani (Japon)	1163	1.8	5μs	4ns
[33]	2002	Heeger (USA)	10	0.26	1μs	9ns

Comment aller plus loin encore en termes de densités de courant et de réduction de durée d'impulsions d'excitation ?

Une des limites actuelles est le temps de réponse des hétéro structures organiques qui dépassent les 10ns alors que l'effet laser, s'il est possible, ne pourra avoir lieu que pendant les toutes premières nanosecondes [21]. Cette contrainte correspond au troisième type de verrous physique cité précédemment.

Comme signalé précédemment, l'excitation électrique engendre des états triplets – non radiatifs – sources de pertes supplémentaires. Ces pertes peuvent être évitées en régime d'excitation pulsée à deux conditions :

- que la durée de l'impulsion soit suffisamment courte pour éviter une accumulation significative des états triplets, c'est-à-dire l'ordre de 0.2 à 20ns nanoseconde [21, 27, 49] ; la durée minimale doit cependant correspondre au moins au temps de transit des porteurs de charges ;
- que la période de répétition soit suffisamment longue pour permettre la relaxation totale des états triplets entre impulsions successives c'est à dire la milliseconde [21].

Il faut donc chercher à "séparer" temporellement les états singulets et triplets. Et pour des raisons de relaxation thermique, si la densité de courant crête d'une impulsion doit être la plus grande possible, sa moyenne temporelle doit être la plus faible possible.

### LES OBJECTIFS DE CE TRAVAIL DE THESE

C'est dans le contexte général de « marche vers la réalisation de la première diode laser organique » que s'inscrit ce travail de thèse. L'une des questions posées est de savoir « comment obtenir l'effet laser dans une hétéro structure de diode électroluminescente organique ». Nous nous focalisons sur cette question avec comme objectif premier d'injecter dans une OLED des densités de courant suffisamment élevées pour atteindre le seuil laser équivalent ; c'est à dire pour atteindre des courants de l'ordre de 2.5 à 10kA/cm<sup>2</sup>.

Comme nous l'avons mis en évidence, des raisons de destruction thermiques imposent de travailler en régime d'excitation impulsionnelle. On peut noter également l'argument des

pertes optiques par absorption dues aux annihilations singulet-triplets qui se manifestent entre  $5ns$  et  $10ns$  après le début de l'excitation électrique. En conséquence, ceci précise la plage de durée d'impulsions dans laquelle nous devons travailler.

Cette gamme de durée d'impulsion visée impose non seulement une réponse rapide du composant, et donc de se confronter aux problématiques spécifiques des hautes fréquences et notamment les problématiques d'adaptation d'impédance.

En effet, une impulsion de largeur  $T = 2.5ns$  qui se répète dans le temps – avec une période de  $1ms$  – produit un spectre de raies dont l'enveloppe est en  $\text{sinc}^2$  et s'étend à l'infini, voir *Figure 0.3*. Une estimation, par le théorème de Parseval, de l'étendue spectrale (ou largeur de bande) « utile » d'une telle impulsion est donnée dans le *Tableau 0.3*.

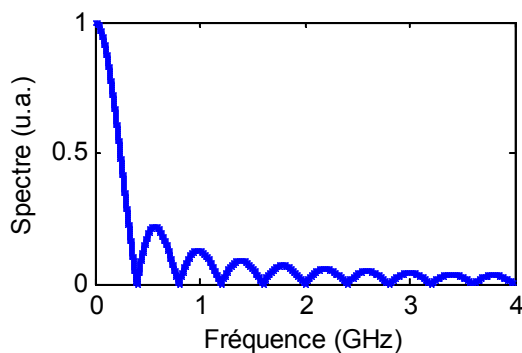


Tableau 0.3 : *Etendue spectrale « utile » à x% de l'énergie d'une impulsion de 2.5ns*

95%	98%	99%
$\approx 2.07/T$ (0.83GHz)	$\approx 5.21/T$ (2.09GHz)	$\approx 10/T$ (4.00GHz)

Figure 0.3 : *Spectre d'une impulsion rectangulaire de durée de 2.5ns*

Ainsi, pour que 98% de l'énergie totale d'une impulsion soit délivrée au circuit de l'OLED, il faut mobiliser des fréquences au-delà de 2GHz. A ces fréquences, l'impédance du circuit doit être adaptée au générateur pour permettre à l'énergie contenue dans l'impulsion électrique d'atteindre la zone active de l'OLED sans être réfléchi. Une adaptation voire une modification de l'hétérostructure organique ou de son circuit d'excitation sont alors nécessaires. Dans le cadre de cette thèse nous nous proposons d'emprunter des techniques l'électronique hyperfréquence pour les conjuguer aux OLEDs afin de réduire son temps de réponse, maximiser l'énergie délivrée à l'OLED et repousser sa limite de destruction.

L'hypothèse sur la constante de temps de l'OLED consiste à considérer que l'OLED en tant que dispositif optoélectronique comme une cascade de deux fonctions de transfert : une fonction de transfert électrique suivie d'une fonction de transfert optique, voir *Figure 0.4*.

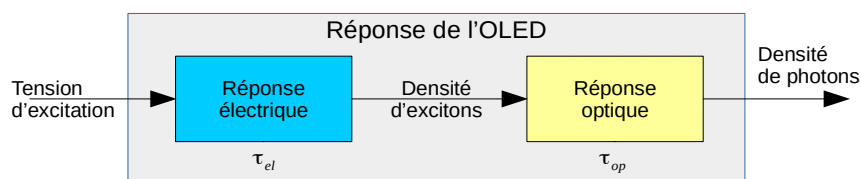


Figure 0.4 : *La réponse de l'OLED se décompose en une réponse électrique suivie d'une réponse optique*

Pour réduire la constante de temps électrique il est impératif de réduire toutes les parties actives et réactives des éléments électriques ( $R, C$ ) qui participent à la constante de temps. Ceci inclut, la capacité de l'OLED qui est modifiable par la réduction de sa surface active, et les résistances séries.

L'intégration sur substrat des éléments du circuit d'excitation (résistance de charge ou tout autre composant passif) doit permettre de réduire les dimensions du dispositif et de mieux contrôler l'impédance du circuit.

## **LA DEMARCHE SCIENTIFIQUE**

La démarche que nous nous proposons d'adopter est la suivante. L'hypothèse de départ est qu'en augmentant la rapidité de OLED, il sera possible d'augmenter les densités de courant maximale qu'elle sera capable d'accepter. Pour réaliser l'OLED la plus rapide possible nous souhaitons combiner optoélectronique organique et électronique hyperfréquence. Pour le faire au mieux, nous allons d'abord revisiter quelques principes de base de chacune des disciplines. Nous en déduisons ensuite des règles de conception pour réaliser des OLEDS rapides que nous modéliserons afin d'identifier les paramètres les plus pertinents permettant d'augmenter la rapidité de l'OLED. Dans un troisième temps nous réaliserons ces dispositifs avant de les caractériser pour vérifier que nous avons bien obtenus les performances souhaitées. Sur la base de la confrontation du modèle et des mesures nous évaluerons la cohérence et la pertinence de nos résultats quitte au besoin à itérer les phases de conception / fabrication / caractérisation pour les améliorer encore.

## **STRUCTURE DU MANUSCRIT**

En conséquence, le présent manuscrit est organisé en quatre chapitres, qui reprennent notre démarche scientifique, complétés par des annexes.

Le premier chapitre est un chapitre de rappel (Rappel sur l'optoélectronique organique et sur l'électronique hyperfréquence) ; il y est présenté dans un premier temps un aperçu des concepts et théories autour de l'électroluminescence dans les matériaux organiques, le principe de fonctionnement des diodes électroluminescentes organiques et dans un deuxième temps des rappels sur les lignes de transmission en hyperfréquence.

Dans le deuxième chapitre (Modélisation électrique et optique des diodes électroluminescentes organiques), nous présentons dans un premier temps le modèle électrique de l'OLED et dans un second temps nous nous intéressons à la modélisation radiofréquence des lignes d'accès à ses électrodes, pour garantir l'excitation en impulsionnel du composant dans les conditions optimales.

Le troisième chapitre (Fabrication et caractérisation de composants) expose le mode opératoire de réalisation des OLEDs et leurs électrodes, et de leur caractérisation dans le régime des impulsions. Dans un premier temps il s'agit de présenter l'hétéro structure

organique, puis les procédés technologiques de fabrication et les outils de caractérisation. Ensuite viennent la présentation des bancs de mesures électriques et optiques en continu et en impulsionnel ainsi que les techniques employées pour le traitement de ces mesures.

Nous consacrons le quatrième et dernier chapitre (Résultats expérimentaux) aux mesures et à la description et l'interprétation des résultats obtenus.



## REFERENCES

1. A. Bernanose, P. Vouaux, Organic electroluminescence type of emission. *J. Chim. Phys.* 50, 261, 1953.
2. A. Bernanose, Electroluminescence of organic compounds, *British Journal of Applied Physics*, vol. 6, n° S4, p. S54, 1955.
3. M. Pope, H. P. Kallmann, et P. Magnante, Electroluminescence in Organic Crystals, *The Journal of Chemical Physics*, vol. 38, n° 8, pp. 2042–2043, 1963.
4. C. W. Tang, S. A. van Slyke, Organic electroluminescent diodes, *Appl. Phys. Lett.*, vol. 51, pp. 913–915, 1987.
5. J. H. Burroughes, D. D. C. Bradley, A. R. Brown, R. N. Marks, K. Mackay, R. H. Friend, P. L. Burns, A. B. Holmes, Light-emitting diodes based on conjugated polymers, *Nature*, vol. 347, pp. 539–541, 1990.
6. A.R. Brown, A. Pomp, C.M. Hart, D.M. de Leeuw, Logic gates made from polymer transistors and their use in ring oscillators. *Science* 270(5238), pp. 972–974, 1995.
7. Z. Bao, A. Bodabalapur, A.J. Lovinger, Soluble and processable regioregular poly(3-hexylthiophene) for thin film field-effect transistor applications with high mobility. *Appl. Phys. Lett.* vol. 69, n° 26, pp. 4108–4110, 1996.
8. C.D. Dimitrakopoulos, P.R.L. Malenfant, Organic thin film transistors for large area electronics. *Adv. Mater.* vol. 14, n° 2, pp. 99–117, 2002.
9. C. J. Brabec, N.S. Sariciftci, J.C. Hummelen, Plastic solar cells. *Adv. Funct. Mater.* vol. 11, n° 1, pp. 15–26, 2001.
10. E. R. Rwenyagila, « A Review of Organic Photovoltaic Energy Source and Its Technological Designs », *International Journal of Photoenergy*, vol. 2017, pp. 1–12, 2017.
11. C. M. Lochner, Y. Khan, A. Pierre, et A. C. Arias, « All-organic optoelectronic sensor for pulse oximetry », *Nature Communications*, vol. 5, p. 5745, dec. 2014.
12. T. Sasaoka et al., « 24.4 L: Late-News Paper: A 13.0-inch AM-OLED Display with Top Emitting Structure and Adaptive Current Mode Programmed Pixel Circuit (TAC) », in *SID Symposium Digest of Technical Papers*, vol. 32, pp. 384–387, 2001.
13. T. Tsujimura et al., « 4.1: A 20-inch OLED Display Driven by Super-Amorphous-Silicon Technology », in *SID Symposium Digest of Technical Papers*, vol. 34, pp. 6–9, 2003.
14. C. A. Bower, E. Menard, S. Bonafede, J. W. Hamer, et R. S. Cok, « Transfer-Printed Microscale Integrated Circuits for High Performance Display Backplanes », *IEEE Transactions on Components, Packaging and Manufacturing Technology*, vol. 1, n° 12, pp. 1916–1922, dec. 2011.
15. H. Nakanotani, S. Akiyama, D. Ohnishi, M. Moriwake, M. Yahiro, T. Yoshihara, S. Tobita, C. Adachi, Extremely low-threshold amplified spontaneous emission of 9,9'-spirobifluorene derivatives and electroluminescence from field-effect transistor structure. *Adv. Funct. Mater.* 17, pp. 2328–2335, 2007.
16. M. A. Baldo, R. J. Holmes, and S. R. Forrest, "Prospects for electrically pumped organic lasers," *Physical Review B*, vol. 66, n° 3, Jul. 2002.
17. C. Gärtner, C. Karnutsch, C. Pflumm, U. Lemmer, Numerical device simulation of double heterostructure organic laser diodes including current-induced absorption processes. *IEEE J. Quantum Electron.* vol. 43, n° 11, pp. 1006–1017, 2007.
18. C. Gärtner, C. Karnutsch, J. Brückner, N. Christ, S. Uebe, U. Lemmer, P. Görrn, T. Rabe, T. Riedl, W. Kowalsky, Loss processes in organic double-heterostructure laser diodes. *Proc. SPIE* 6655, 665525, 2007.
19. C. Gärtner, C. Karnutsch, U. Lemmer, C. Pflumm, The influence of annihilation processes on the threshold current density of organic laser diodes. *J. Appl. Phys.* 101, 023107, 2007.

20. I. D. W. Samuel et G. A. Turnbull, *Organic Semiconductor Lasers*, *Chemical Reviews*, vol. 107, n° 4, pp. 1272–1295, avr. 2007.
21. L. Zeng, *Étude théorique et expérimentale de  $\mu$ -OLED en régime impulsif à très haute densité de courant*, Thèse de Doctorat, Université Paris 13, 2016.
22. G. F. Barlow et K. A. Shore, « Threshold current analysis of distributed feed-back organic semiconductor lasers », *IEE Proceedings - Optoelectronics*, vol. 148, n° 1, pp. 2–6, feb. 2001.
23. V. G. Kozlov et al., « Structures for organic diode lasers and optical properties of organic semiconductors under intense optical and electrical excitations », *IEEE Journal of Quantum Electronics*, vol. 36, n° 1, pp. 18–26, 2000.
24. S. A. Kovalenko, N. P. Ernsting, et J. Ruthmann, « Femtosecond hole-burning spectroscopy of the dye DCM in solution: the transition from the locally excited to a charge-transfer state », *Chemical physics letters*, vol. 258, n° 34, pp. 445–454, 1996.
25. H. Nakanotani, H. Sasabe, et C. Adachi, « Singlet-singlet and singlet-heat annihilations in fluorescence-based organic light-emitting diodes under steady-state high current density », *Applied Physics Letters*, vol. 86, n° 21, p. 213506, mai 2005.
26. A. Coens et al., « Experimental optimization of the optical and electrical properties of a half-wavelength-thick organic hetero-structure in a Micro-cavity », *Optics express*, vol. 20, n° 28, pp. 29252–29259, 2012.
27. N. Tessler et al., « Pulsed excitation of low-mobility light-emitting diodes: Implication for organic lasers », *Applied Physics Letters*, vol. 74, n° 19, pp. 2764–2766, mai 1999.
28. L. Zeng et al., « Electrical and Optical Impulse Response of High-Speed Micro-OLEDs Under UltraShort Pulse Excitation », *IEEE Transactions on Electron Devices*, vol. 64, n° 7, pp. 2942–2948, 2017.
29. K. Hayashi et al., « Suppression of roll-off characteristics of organic light-emitting diodes by narrowing current injection/transport area to 50 nm », *Applied Physics Letters*, vol. 106, n° 9, p. 093301, mars 2015.
30. D. Kasemann, R. Brückner, H. Fröb, et K. Leo, « Organic light-emitting diodes under high currents explored by transient electroluminescence on the nanosecond scale », *Physical Review B*, vol. 84, n° 11, sept. 2011.
31. J. Wang, R. G. Sun, G. Yu, et A. J. Heeger, « Fast pulsed electroluminescence from polymer light-emitting diodes », *Journal of Applied Physics*, vol. 91, n° 4, pp. 2417–2422, feb. 2002.
32. N. C. Giebink et S. R. Forrest, « Temporal response of optically pumped organic semiconductor lasers and its implication for reaching threshold under electrical excitation », *Physical Review B*, vol. 79, n° 7, feb. 2009.
33. H. Nakanotani, T. Oyamada, Y. Kawamura, H. Sasabe, et C. Adachi, « Injection and transport of high current density over 1000 A/cm<sup>2</sup> in organic light emitting diodes under pulse excitation », *Japanese journal of applied physics*, vol. 44, n° 6R, p. 3659, 2005.
34. T. Granlund et al., « A polythiophene microcavity laser », *Chemical Physics Letters* 288, pp 879–884, 1998.
35. V. G. Kozlov et al., « Study of lasing action based on Förster energy transfer in optically pumped organic semiconductor thin films », *Journal of Applied Physics*, vol. 84, n° 8, pp. 4096–4108, oct. 1998.
36. S. Riechel et al., « Laser modes in organic solid-state distributed feedback lasers », *Applied Physics B*, vol. 71, n° 6, pp. 897–900, dec. 2000.
37. V. G. Kozlov et al., « Structures for organic diode lasers and optical properties of organic semiconductors under intense optical and electrical excitations », *IEEE Journal of Quantum Electronics*, vol. 36, n° 1, pp. 18–26, 2000.
38. G. Heliotis et al., « Blue, surface-emitting, distributed feedback polyfluorene lasers », *Applied Physics Letters*, vol. 83, n° 11, pp. 2118–2120, sept. 2003.
39. M. Koschorreck, R. Gehlhaar, V. G. Lyssenko, M. Swoboda, M. Hoffmann, et K. Leo, « Dynamics of a high-Q vertical-cavity organic laser », *Applied Physics Letters*, vol. 87, n° 18, p. 181108, oct. 2005.

40. D. Pisignano et al., "Emission properties of printed organic semiconductor lasers", *Optics Letters*, vol. 30, n° 3, Feb. 2005.
41. Aimée Rose, E. B. Ford, V. Lystad, et F. A. Rasio, « Planet–planet scattering in the upsilon Andromedae system », *Nature*, vol. 434, n° 7035, pp. 873–876, avr. 2005.
42. C. Karnutsch et al., « Improved organic semiconductor lasers based on a mixed-order distributed feedback resonator design », *Applied Physics Letters*, vol. 90, n° 13, p. 131104, march 2007.
43. X. Liu, H. Li, C. Song, Y. Liao, et M. Tian, « Microcavity organic laser device under electrical pumping », *Optics letters*, vol. 34, n° 4, pp. 503–505, 2009.
44. M. Hirade, H. Nakanotani, R. Hattori, A. Ikeda, M. Yahiro, et C. Adachi, « Low-Threshold Blue Emission from First-Order Organic DFB Laser Using 2,7-bis[4-(N-carbazole)phenylvinyl]-9,9'-Spirobifluorene as Active Gain Medium », *Molecular Crystals and Liquid Crystals*, vol. 504, n° 1, pp. 1–8, june 2009.
45. R. Xia, "Low-Threshold Distributed-Feedback Lasers Based on Pyrene-Cored Starburst Molecules with 1,3,6,8-Attached Oligo(9,9-Dialkylfluorene) Arms", *Adv. Funct. Mater.*, vol. 19, pp. 2844–2850, 2009.
46. A. Coens et al., « Experimental optimization of the optical and electrical properties of a half-wavelength-thick organic hetero-structure in a Micro-cavity », *Optics Express*, vol. 20, n° 28, pp. 29252–29259, 2012.
47. A. E. Vasdekis et al., « Diode pumped distributed Bragg reflector lasers based on a dye-to-polymer energy transfer blend », *Optics Express*, vol. 14, no 20, pp. 9211–9216, 2006.
48. H. Nakanotani, T. Oyamada, Y. Kawamura, H. Sasabe, et C. Adachi, « Injection and transport of high current density over 1000 A/cm<sup>2</sup> in organic light emitting diodes under pulse excitation », *Japanese journal of applied physics*, vol. 44, n° 6R, p. 3659, 2005.
49. A. J. C. Kuehne and M. C. Gather, "Organic Lasers: Recent Developments on Materials, Device Geometries, and Fabrication Techniques," *Chemical Reviews*, vol. 116, n°. 21, pp. 12823–12864, nov. 2016.



# 1. RAPPELS SUR L'OPTOÉLECTRONIQUE ORGANIQUE ET L'ÉLECTRONIQUE HYPERFRÉQUENCE

## SOMMAIRE

INTRODUCTION .....	13
1.1. GENERALITES SUR LES SEMI-CONDUCTEURS ORGANIQUES .....	13
1.1.1. Structure moléculaire des matériaux organiques .....	13
1.1.1.1. Configuration électronique du carbone .....	13
1.1.1.2. Notion de conjugaison .....	15
1.1.1.3. Notion de bande d'énergie .....	15
1.1.1.4. Notion d'exciton .....	16
1.1.2. Propriétés optiques .....	17
1.1.3. Propriétés électriques .....	19
1.1.3.1. Modèle du piègeage multiple .....	20
1.1.3.2. Modèle du saut multiple .....	21
1.2. DIODE ELECTROLUMINESCENTE ORGANIQUE (OLED) .....	21
1.2.1. Historique .....	21
1.2.2. Structure .....	21
1.2.3. Fonctionnement .....	22
1.2.3.1. Injection de porteurs de charges .....	23
1.2.3.1.1. Modèle de Richardson–Schottky : Injection thermoionique .....	24
1.2.3.1.2. Injection par effet tunnel .....	25
1.2.3.2. Transport de charges .....	25
1.2.3.2.1. Courant limité par la charge d'espace (Space Charge Limited Current, SCLC) .....	26
1.2.3.2.2. Modèle de Poole Frenkel .....	26
1.2.3.3. Recombinaison des porteurs de charges .....	26
1.2.3.3.1. Notion d'exciton .....	26
1.2.3.3.2. Modèle de recombinaison de Langevin : taux de recombinaison .....	27
1.2.3.3.3. Le rapport singulet/triplet .....	27
1.2.3.4. Mécanismes de transfert d'énergie .....	27
1.2.3.4.1. Transfert de FÖRSTER .....	28
1.2.3.4.2. Transfert de DEXTER .....	29
1.2.3.5. Désactivation de l'exciton .....	30
1.2.3.6. Durée de vie et rendement de fluorescence .....	30
1.3. RAPPELS SUR LES LIGNES DE TRANSMISSION .....	31
1.3.1. Ligne de transmission : définition .....	31
1.3.2. Modèle d'une ligne de transmission : paramètres primaires .....	31
1.3.3. Equation de propagation .....	33
1.3.4. Cas particulier du régime harmonique .....	34
1.3.4.1. Constante de propagation .....	34
1.3.4.2. Solution de l'équation de propagation .....	34
1.3.4.3. Impédance caractéristique d'une ligne .....	35
1.3.4.4. Réflexion sur la ligne .....	36
1.3.4.5. Coefficient de transmission .....	37
1.3.4.6. Puissance transportée par une ligne .....	37
1.3.4.7. Impédance à l'entrée d'une ligne .....	37
1.3.4.8. Adaptation d'impédance .....	38
1.3.5. La ligne coplanaire .....	39
CONCLUSION .....	39
REFERENCES .....	40



## INTRODUCTION

Afin de mieux appréhender les notions de courant et de transport de charges dans les matériaux organiques, ce chapitre commence par une présentation des concepts et théories sur les semi-conducteurs organiques, sur leur électro-luminescence, le transport des charges dans ces milieux (§1.1). Il aborde ensuite le principe de fonctionnement des diodes électroluminescentes organiques (§1.2). Pour finir, le paragraphe §1.3 explore les bases des lignes de transmission en hyperfréquence afin d'identifier des solutions permettant d'obtenir des réponses électriques rapides dans le domaine impulsionnel. Il s'agit plus particulièrement d'adapter le circuit de l'OLED en empruntant les outils aux techniques de l'électronique hyperfréquence.

### 1.1. GENERALITES SUR LES SEMI-CONDUCTEURS ORGANIQUES

Ce paragraphe est consacré aux semi-conducteurs organiques c'est à dire aux molécules conjuguées en se focalisant notamment sur les bases de la conduction et le lien avec le courant dans les OLEDs. Ceci s'appuie sur des notions comme la structure en bande dans les matériaux semi-conducteurs organiques, leurs propriétés électriques et optiques.

#### 1.1.1. Structure moléculaire des matériaux organiques

Les matériaux organiques peuvent se présenter sous la forme de petites molécules ou de longues chaînes polymères qui possèdent une structure  $\pi$ -conjuguée, alternance de simples liaisons et de doubles liaisons entre atomes de carbone. La différence entre ces matériaux réside dans la taille des molécules, c'est à dire la longueur de la chaîne moléculaire.

##### 1.1.1.1. Configuration électronique du carbone

Le carbone est l'élément essentiel des matériaux organiques. Il est constitué de six électrons répartis autour du noyau sur différentes orbitales. La configuration électronique dans l'état fondamental de l'atome de carbone isolé est  $1s^2 2s^2 2p^2$  comme on le voit sur la Figure 1.1a [1]. Les orbitales  $1s$  et  $2s$  sont occupées chacune par deux électrons appariés tandis que deux des trois orbitales  $2p$  sont occupées chacune par un électron célibataire (ou non apparié) sur l'orbitale  $2p$ .

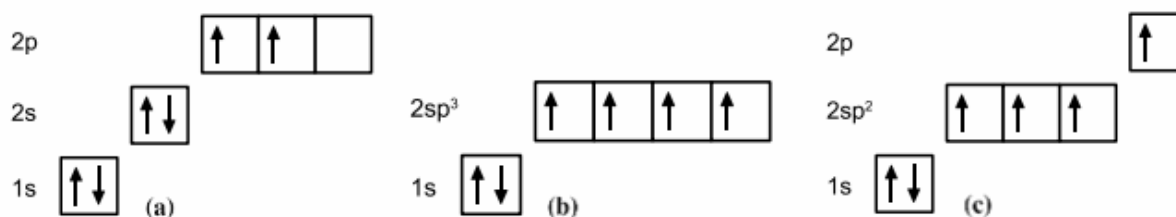


Figure 1.1 : Configuration électronique de l'atome de carbone  
(a) état fondamental ; (b) hybridation  $sp^3$  ; (c) hybridation  $sp^2$ .

La répartition spatiale des orbitales  $s$  et  $p$  est illustrée à la Figure 1.2 [2]. Les orbitales  $s$  sont des sphères alors que les orbitales  $p$  sont des lobes allongés en forme «de 8», de symétrie axiale orientée selon l'une des trois directions d'un trièdre trirectangle. On les nomme respectivement  $p_x$ ,  $p_y$  et  $p_z$  en fonction de leur orientation.

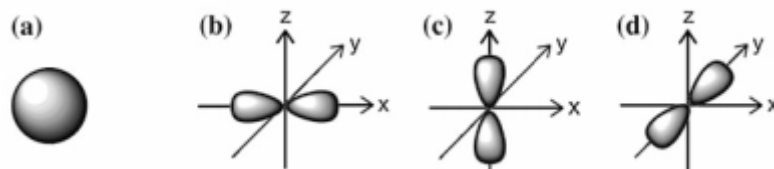


Figure 1.2 : Répartition spatiale des orbitales  $s$  (a) et  $p$  :  $p_x$  (b),  $p_y$  (c) et  $p_z$  (d)

Dans les molécules organiques, les orbitales atomiques  $2s$  et  $2p$  du carbone peuvent s'hybrider en différentes géométries selon les liaisons entre atomes. L'hybridation  $sp^2$  est le résultat de la combinaison des orbitales  $2s$  et  $2p$  pour former trois orbitales coplanaires hybrides à moitié remplies, tandis que le quatrième électron occupe une orbitale non hybride  $2p$  perpendiculaire au plan des trois autres ; c'est le cas dans la molécule d'éthylène, voir Figure 1.3. Les deux atomes de carbone peuvent établir entre eux deux liaisons de nature différente, l'une par l'intermédiaire de leurs orbitales hybrides  $sp$ , l'autre par celui de leurs orbitales non hybridées  $2p$ . Le recouvrement longitudinal des orbitales  $sp$  donne lieu à des orbitales moléculaires liante  $\sigma_-$  (de plus basse énergie) et anti-liante  $\sigma_+$  (de plus grande énergie), voir Figure 1.3b. Du fait de l'ampleur du recouvrement, la liaison résultant de la formation de l'orbitale liante, est très stable, et confère à la molécule sa rigidité. En contrepartie, la déstabilisation à laquelle correspond l'orbitale  $\sigma_+$  est elle aussi importante, et il sera donc difficile d'exciter les électrons  $\sigma$  vers ce niveau. À l'inverse, le recouvrement latéral des orbitales  $2p$  est faible, et les orbitales moléculaires liante  $\pi_-$  et anti-liante  $\pi_+$  qu'il génère, sont peu distantes en énergie (Figure 1.3b). Les électrons  $\pi$  impliqués dans cette liaison peuvent passer librement d'un atome de carbone à un autre : ils sont dit délocalisés. Cependant, le principe de Pauli voudrait que seule l'orbitale liante  $\pi_-$  soit occupée à l'équilibre thermique [3], l'orbitale anti-liante restant inoccupée.

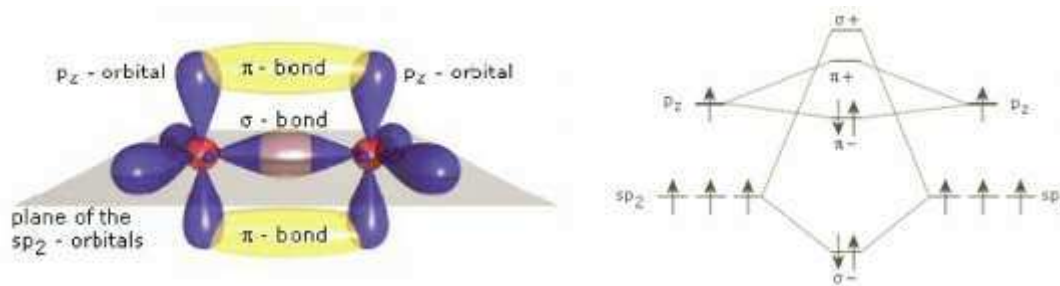


Figure 1.3 : Hybridation  $sp^2$  (a) et diagramme d'énergie correspondant (b)



### 1.1.1.2. Notion de conjugaison

Si l'on s'intéresse à une chaîne de carbones hybridés  $sp^2$  comme on peut le voir sur la Figure 1.4a, l'orbitale  $2p$  de chaque atome de carbone peut se recouvrir avec celle de l'un quelconque des ses deux voisins. Le nombre d'électrons (et d'orbitales) étant insuffisant pour assurer des liaisons  $\pi$  entre toutes les paires d'atome de carbone voisins, les électrons  $\pi$  ne sont plus localisés sur une liaison, mais ont une probabilité de présence non nulle entre deux doubles liaisons : c'est la notion de conjugaison. On la schématise généralement par une alternance de liaisons simples et doubles (Figure 1.4b).



Figure 1.4 : (a) Chaîne de carbones hybridés  $sp^2$  (b) Représentation conventionnelle d'une chaîne  $\pi$ -conjuguée.

L'ossature d'une molécule organique conjuguée est donc une alternance des liaisons carbone-carbone simples et doubles. La liaison  $\sigma$ , plus longue et plus forte est responsable de la rigidité de la double liaison  $C=C$  ; il assure la cohésion du squelette de la molécule. Tout aussi important, la liaison  $\pi$  est plus faible, ce qui entraîne une forte délocalisation de ses électrons. Les électrons  $\pi$ , alors non assignés à un atome particulier, peuvent participer au mouvement des charges au sein de la molécule conjuguée en passant d'un atome de carbone à l'autre et donnant ainsi lieu aux propriétés de conduction dans la chaîne de molécule conjuguée [4].

### 1.1.1.3. Notion de bande d'énergie

Les énergies des niveaux  $\pi_-$  et  $\pi_+$ , associés aux doubles liaisons, sont modifiées sous l'effet de la délocalisation. En augmentant le nombre d'atomes de carbone, et par conséquent la longueur de délocalisation, les orbitales moléculaires  $\pi_-$  et  $\pi_+$  se rapprochent davantage avec un resserrement de niveaux d'énergie discrets pour un très grand nombre d'atomes. On évolue alors vers un modèle à deux bandes d'énergie quasi continues dénommées bandes  $\pi_-$  et  $\pi_+$  (Figure 1.5).

A l'équilibre thermique, la limite supérieure de la bande  $\pi_-$  ou orbitale moléculaire occupée la plus haute est appelée HOMO (*Highest Occupied Molecular Orbital*) ou plus simplement dernier niveau occupé. A l'opposé, l'extrémité inférieure de la bande  $\pi_+$  ou orbitale moléculaire inoccupée la plus basse à l'équilibre thermique est désignée par LUMO (*Lowest unoccupied Molecular Orbital*) ou premier niveau vacant.

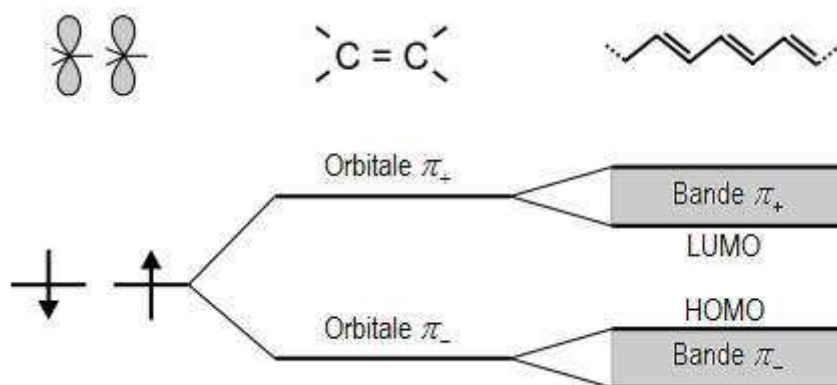


Figure 1.5 : Illustration de la formation des bandes : l'augmentation du nombre d'atomes de carbone conduit à la formation de bandes quasi continues d'états occupés et inoccupés.

Les niveaux énergétiques des orbitales limites HOMO et LUMO jouent un rôle important dans les propriétés optiques et électriques de la molécule. Le premier traduit son caractère électro-donneur ; plus il est élevé, plus facilement la molécule cède des électrons. Le second traduit le caractère électro-accepteur de la molécule ; plus il est faible, plus facilement la molécule accepte des électrons. Typiquement, les deux sont séparés par un gap énergétique  $E_g$  relativement faible. Ce faible gap facilite la création de porteurs de charges, et est à l'origine des propriétés semi-conductrices dans les matériaux  $\pi$ -conjugués. Dans le cas de matériaux émetteur de lumière, ce gap énergétique est relié à la longueur d'onde d'émission par la relation :

$$E_g = \frac{hc}{\lambda} \quad \text{Eq. 1.1}$$

$h$  est la constante de Planck,  $c$  la vitesse de la lumière dans le vide et  $\lambda$  la longueur d'onde d'émission.

Les valeurs typiques dans les semi conducteurs organiques oscillent entre 1.5 et 5eV [3, 5], ce qui permet des applications dans le domaine du visible. Plus la chaîne moléculaire est longue, moindre est le gap énergétique ; si on prend en compte la relation (eq 1.1), la longueur de la conjugaison peut être utilisée comme moyen de contrôle de la longueur d'onde d'émission dans les matériaux organique.

#### 1.1.1.4. Notion d'exciton

Sous l'effet d'une énergie d'excitation appropriée, un électron peut transiter de l'orbitale HOMO vers l'orbitale LUMO et former un exciton (paire électron-trou liée). L'exciton ainsi formé est selon les cas dans un état singulet ou dans un état triplet. L'état singulet correspond à la configuration dans laquelle l'électron excité est de spin opposé à l'électron apparié situé sur le niveau fondamental, ce qu'on représente par  $\uparrow\downarrow$ . L'état triplet correspond à une configuration dans laquelle le spin de l'électron excité est parallèle à celui de l'électron avec lequel il était apparié à l'état fondamental ; il est représenté par  $\uparrow\uparrow$ .

### 1.1.2. Propriétés optiques

En plus de leur propriétés semi conductrices que nous venons d'évoquer, certains matériaux organiques sont électroluminescents ou photoluminescents c'est-à-dire capable de générer de la lumière par excitation électrique ou optique respectivement.

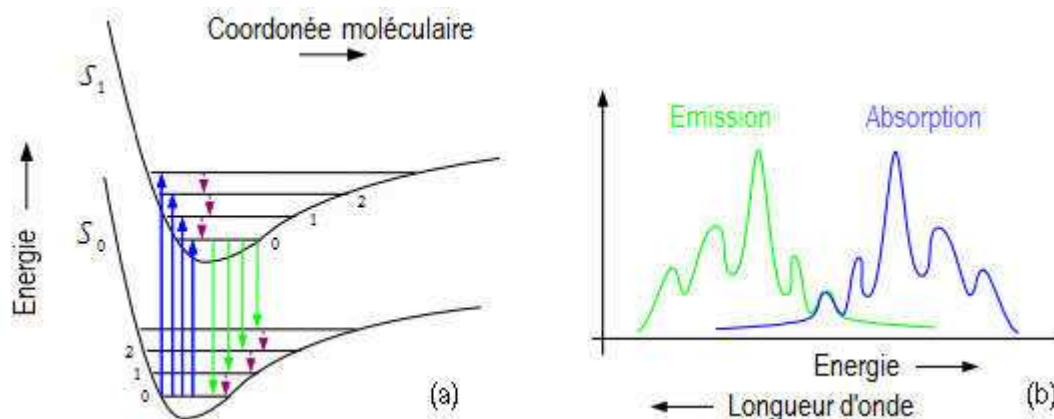


Figure 1.6 : Diagramme énergétique d'une molécule, transitions électroniques et spectre d'absorption et de fluorescence correspondant

L'absorption d'un photon et la fluorescence s'accompagne de transitions électroniques considérées comme instantanées dans l'échelle de temps des mouvements nucléaires (principe de FRANCK-CONDON [6]). La Figure 1.6a représente le diagramme énergétique et les transitions électroniques dans une molécule. Ces transitions sont schématisées par des traits verticaux (montant pour l'absorption et descendant pour l'émission) ;  $S_0$  et  $S_1$  représentent respectivement l'état fondamental et le premier état singulet excité. Ils se subdivisent chacun en une série de niveaux vibrationnels numérotés 0, 1, 2, ... à partir du niveau d'énergie le plus bas. De façon simpliste, l'absorption d'un photon incident d'énergie suffisante excite la molécule qui passe du niveau vibrationnel 0 de l'état fondamental  $S_0$  vers un niveau vibrationnel quelconque de l'état singulet  $S_1$ . L'énergie de transition électronique, qui correspond alors à l'écart énergétique entre les niveaux vibrationnels mis en jeu, est inversement proportionnelle à la longueur d'onde du photon. L'absorption est suivie, le cas échéant, d'une relaxation vibrationnelle vers le niveau vibrationnel 0 du même état excité. Le processus de désactivation radiative ou fluorescence se produit à partir du niveau vibrationnel 0 de l'état  $S_1$ , vers un niveau vibrationnel quelconque de l'état fondamental  $S_0$  ; l'énergie de transition dans ce cas fixe la longueur d'onde d'émission.

La Figure 1.6b montre les spectres d'absorption et d'émission. On remarquera que les longueurs d'onde de photoluminescence sont en général plus grandes que les longueurs d'ondes d'absorption. Ce phénomène, dénommé décalage de STOKES [7, 8], s'explique par les pertes d'énergie dans les processus de relaxation vibrationnels.

Dans une situation plus réaliste, les mécanismes d'absorption et d'émission de la lumière dans une molécule conjuguée sont beaucoup plus complexes. Les processus photo

physiques susceptibles d'intervenir par excitation photonique sont résumés dans le diagramme de JABLONSKI représenté en Figure 1.7.

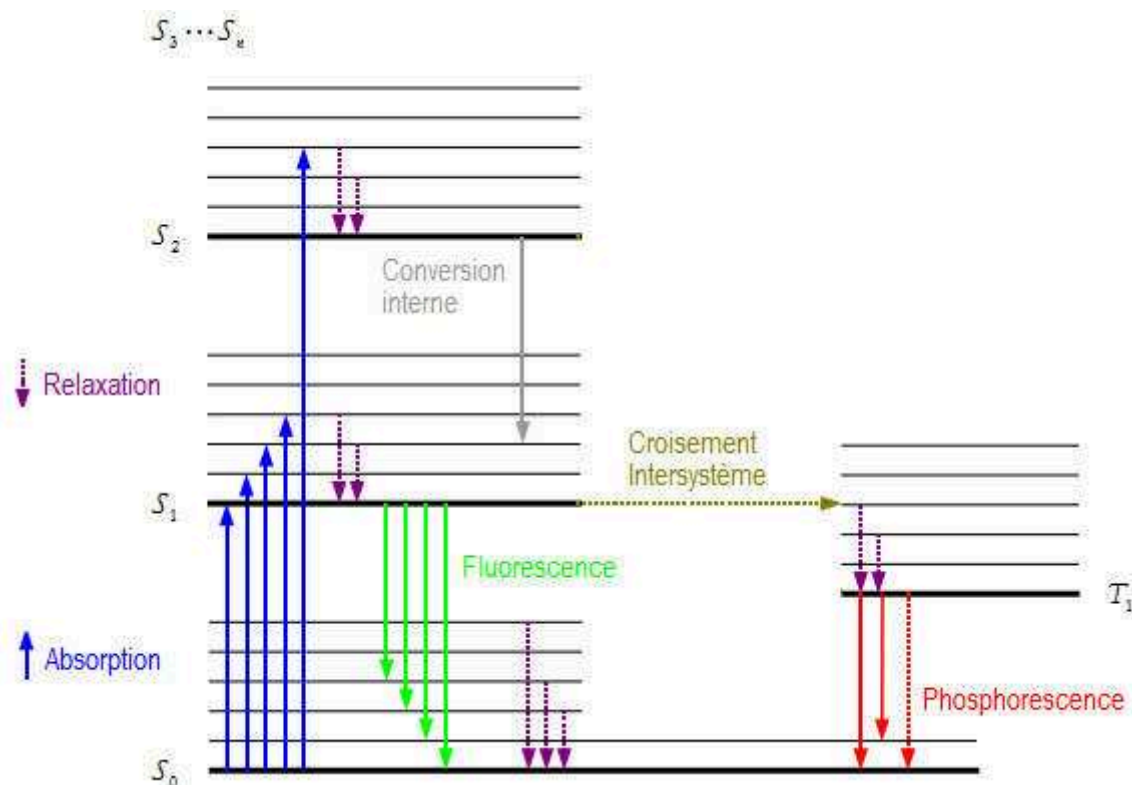


Figure 1.7 : Diagramme de Jablonski d'une molécule organique montrant les différentes transitions électroniques entre état fondamental et états excités singulet et triplet.

La molécule est supposée initialement dans un état fondamental singulet  $S_0$ , au niveau vibrationnel fondamental 0. L'absorption d'un photon la porte vers un état excité singulet  $S_1$ , ou  $S_2$ , ...,  $S_N$ , et dans l'un de ses divers niveaux vibrationnels. Ce phénomène très rapide est de l'ordre de la femtoseconde. La durée de vie des états excités singulet supérieurs  $S_2$ , ...,  $S_N$  et des niveaux vibrationnels supérieurs étant très brève (de l'ordre de la picoseconde), la molécule revient avant toute autre évolution, par relaxation vibrationnelle (ou conversion interne), vers le niveau vibrationnel fondamental de l'état excité  $S_1$ . La durée de vie dans cet état de l'ordre de la nanoseconde. Ensuite, plusieurs processus peuvent entrer en compétition :

- La désactivation non radiative de la molécule vers l'état fondamental.
- La fluorescence ou désactivation radiative vers l'état fondamental dans un état vibrationnel quelconque.
- La conversion inter système (ISC, *InterSystem Crossing*) vers un état excité triplet  $T_1$ . Bien que limitée par les règles de sélection des spins [9], une transition singulet  $\rightarrow$  triplet peut intervenir avec une certaine efficacité entre les niveaux  $S_1$  et  $T_1$  en raison de leur proximité énergétique. L'état  $T_1$  ne pouvant ensuite évoluer que vers

l'état  $S_0$  selon une transition triplet  $\rightarrow$  singulet interdite, il a une durée de vie relativement longue, typiquement de l'ordre de la milliseconde. Cette transition est à prédominance non radiative, mais peut toutefois donner lieu à de la phosphorescence avec un rendement quantique faible.

Dans les matériaux fluorescents utilisés dans les OLEDs, le processus de phosphorescence est peu probable et peu efficace comparé à la fluorescence, en raison du très grand rapport de durée de vie entre état triplet et état singulet [10]. Il a cependant un meilleur rendement quantique dans les molécules spécifiques contenant des atomes lourds comme le brome, l'iode ou des métaux de transition, qui favorisent le couplage spin-orbite et « mélangent » les états singulet et triplet. En contrepartie, le rendement quantique de fluorescence est moindre, voire inexistant. Le *Tableau 1.1* récapitule les mécanismes mis en jeu.

Tableau 1.1 : Processus d'excitation / désexcitation et temps caractéristiques

Processus	Définition	Exemples de transitions	Temps caractéristique
Absorption	Excitation	$S_0 + h\nu_{0n} \Rightarrow S_n$	$\sim 10^{-15} \text{ s}$
Fluorescence	Désexcitation radiative entre états de même spin (transition permise)	$S_n \Rightarrow h\nu_{nm} + S_{m<n}$ $T_n \Rightarrow h\nu_{nm} + T_{m<n}$	$\sim 10^{-10} - 10^{-7} \text{ s}$
Phosphorescence	Désexcitation radiative entre états de spin différents (transition interdite)	$T_n \Rightarrow h\nu_{nm} + S_{m<n}$ $S_n \Rightarrow h\nu_{nm} + T_{m<n}$	$\sim 10^{-6} - 1 \text{ s}$
Conversion interne (IC)	Transition non-radiative entre états de même spin	$S_n \approx S_{m<n}$ $T_n \approx T_{m<n}$	$\sim 10^{-11} - 10^{-9} \text{ s}$
Croisement intersystème	Transition non-radiative entre états de spins différents	$S_n \approx T_{m<n}$ $T_n \approx S_{m<n}$	$\sim 10^{-10} - 10^{-8} \text{ s}$
Relaxation vibrationnelle	Transitions non-radiatives à l'intérieur d'un même état électronique	$S_n _{v \geq 1} \approx S_n _{v=0}$ $T_n _{v \geq 1} \approx T_n _{v=0}$	$\sim 10^{-12} - 10^{-10} \text{ s}$

### 1.1.3. Propriétés électriques

Dans les matériaux organiques, le déplacement de charges se fait par entraînement (ou dérive) et diffusion. La diffusion est définie comme un déplacement local de la charge autour d'une position moyenne, alors que la dérive induit un déplacement de la position moyenne. L'un des paramètres clefs est la mobilité de charges.

En l'absence de champ externe, le mouvement de porteur de charge se fait par diffusion et peut être décrit par le déplacement moyen :

$$\langle x^2 \rangle = 2nDt \tag{Eq. 1.2}$$

où  $t$  est le temps,  $D$  la constante de diffusion et  $n$  un entier valant 1, 2 ou 3 selon que le déplacement est évalué en  $1D$ ,  $2D$  ou  $3D$  respectivement.

La mobilité de charge  $\mu$  est liée au coefficient de diffusion via l'équation d'Einstein-Smoluchowski :

$$\mu = \frac{eD}{k_B T} \quad \text{Eq. 1.3}$$

où  $e$  est la charge d'un électron,  $k_B$  la constante de Boltzmann et  $T$  la température.

Sous l'effet de l'application d'un champ électrique externe, le phénomène de transport de charges par dérive apparaît et la mobilité peut alors être définie comme la vitesse moyenne d'entraînement d'une charge par unité de champ électrique appliqué. Elle est donnée dans ce cas par la relation :

$$\mu = \frac{v}{E} \quad \text{Eq. 1.4}$$

où  $v$  est la vitesse de d'entraînement du porteur de charge sous un champ électrique appliqué  $E$ .

Plusieurs théories ont été proposées pour décrire le transport de charges dans des matériaux semi-conducteurs organiques [11-13], mais aucune n'explique, à elle seule, toutes les observations expérimentales. Il est probable que plusieurs mécanismes apparaissent de façon concurrente, avec une domination par l'un ou l'autre selon les conditions spécifiques. Deux d'entre eux sont cependant communément utilisés pour décrire la conduction selon que le matériau organique est exempt de pièges ou non. Il s'agit du modèle du piégeage multiple (multiple trapping) et du modèle du saut (hopping).

### **1.1.3.1. Modèle du piégeage multiple**

Le modèle du piégeage multiple, développé à l'origine pour décrire le transport de charges dans le silicium amorphe hydrogéné [14], est parfois utilisé pour expliquer le transport dans les semi-conducteurs organiques [15]. Il suppose que le transport de charge se fait via des états énergétiques délocalisés étendus (bande d'énergie), entravés par des impuretés, les défauts, etc., donc résultent une distribution de pièges près de la bande de transport. Au cours de leurs mouvements, les porteurs de charges peuvent être piégés, puis relâchés thermiquement, après un certain temps, pour atteindre la bande de transport, où ils peuvent être piégés à nouveau. Le délai de piégeage dépend fortement de la température et de la profondeur du piège. Plus la température est élevée et plus le piégeage est faible, plus vite les porteurs sont relâchés. Ce modèle prédit une dépendance de la mobilité à la température selon la relation Eq. 1.15 [14]. Il a été utilisé avec beaucoup de succès pour décrire le transport dans les films organique [15, 16], bien que le modèle plus complexe du saut multiple, ci-après décrit, s'avère plus pertinent.

$$\mu \propto \exp\left(-\frac{\Delta}{kT}\right) \quad \text{Eq. 1.5}$$

où  $\Delta$  est l'énergie d'activation.

### 1.1.3.2. Modèle du saut multiple

En raison du faible couplage intermoléculaire dans les semi-conducteurs organiques et un niveau de désordre élevé, les états des porteurs de charges sont considérés comme localisés. Le transport de charge est alors typiquement décrit par saut [17, 18], c'est-à-dire par effet tunnel thermiquement activé entre états localisés. La mobilité des porteurs de charge correspondante dépend de leur énergie dans la répartition de la densité des états. Elle augmente si la densité des états voisins est grande et / ou s'il existe des états disponibles de plus faible énergie [11]. À température élevée, l'énergie thermique est suffisante pour franchir les petites barrières énergétiques tandis qu'à basse température le transport ne se fait que par effet tunnel. En général, le transport de charge dans les semi-conducteurs organiques désordonnés est décrit comme une succession de sauts de porteurs de charges d'un site à l'autre, suivies de relaxation polaronique.

## 1.2. DIODE ELECTROLUMINESCENTE ORGANIQUE (OLED)

### 1.2.1. Historique

L'électroluminescence dans les matériaux organiques a été reporté pour la première fois en 1953 [19, 20], mais ce n'est qu'en 1987 que la première diode électroluminescente organique efficace comprenant une structure d'hétérojonction bicouche a été démontrée [21]. Pour la première fois, une luminosité raisonnable a été obtenue d'un dispositif électroluminescent organique sous une tension d'excitation inférieure à 10V. Depuis lors des efforts considérables ont été faits et aujourd'hui, on retrouve des dispositifs à base d'OLED dans le commerce, notamment dans l'affichage et l'éclairage [22], bien que les coûts de production soient encore élevés.

### 1.2.2. Structure

Une OLED est constituée d'un empilement de films de matériaux organiques, en sandwich entre deux électrodes de nature chimique différente et dont l'une au moins est transparente pour laisser échapper la lumière, voir Figure 1.8.

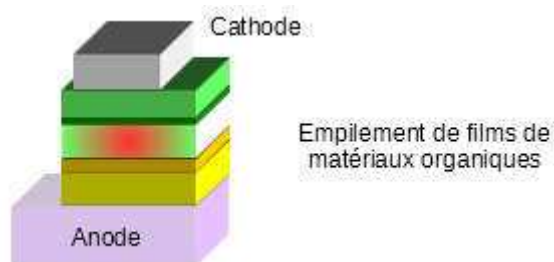


Figure 1.8 : Structure d'une OLED

L'électrode transparente couramment utilisée aujourd'hui est un alliage d'oxyde d'indium et d'étain (ITO – Indium Tin Oxyde), pour l'anode. Il est commercialisé sous forme d'une couche mince de l'ordre de 150 nm d'épaisseur sur substrat de verre ou de polymère et présentant une résistivité de  $8 - 20 \Omega / \text{carré}$ . La cathode est généralement un métal à faible travail de sortie comme l'aluminium. Le milieu organique est un empilement de multiples couches minces de matériaux organiques déposés sur l'électrode d'ITO soit par sublimation dans le cas des petites molécules, soit par enduction centrifuge (ou « *spin-coating* ») dans le cas des polymères.

Chacune des couches organiques va jouer un rôle particulier dans le fonctionnement de l'OLED étant donné qu'une seule couche ne peut pas assurer efficacement toutes les fonctions impliquées dans le processus de génération de lumière (voir paragraphe §1.2.3). Dans ce concept multicouche, on parlera par exemple de couche d'injection de trous (HIL), de couches transport de trous (HTL) et d'électrons (ETL), de couche d'émission (EML), de couches de blocage des trous (HBL). La *Figure 1.9* montre l'évolution dans le temps de la structure multicouche des OLEDs.

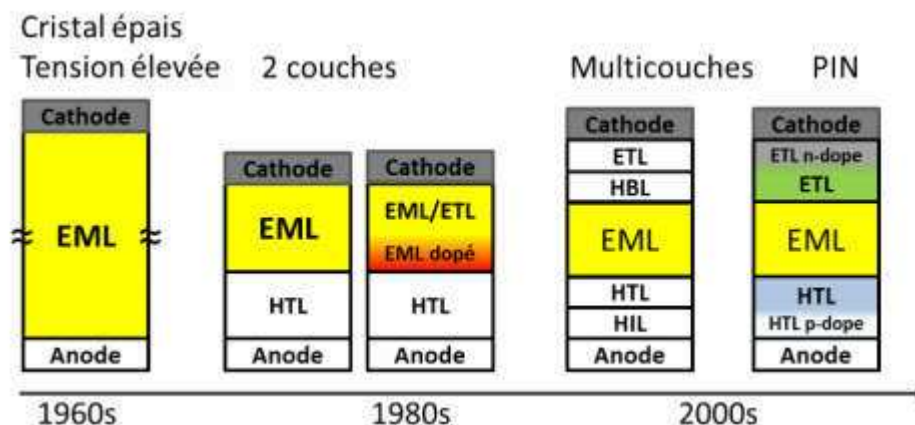


Figure 1.9 : Evolution de la structure des OLEDs [23]

### 1.2.3. Fonctionnement

Il est d'usage de décrire le fonctionnement d'une OLED au travers de quatre processus physiques majeurs successifs comme illustré sur la *Figure 1.10* [24] :

- l'injection des porteurs de charges depuis les électrodes vers les bandes LUMO et HOMO des couches adjacentes sous l'effet d'une tension appliquée ;
- le transport des porteurs de charges sous l'effet d'un champ électrique imposé (migration vers l'intérieur de la matière organique) sous forme d'espèces chargées appelées polarons (quasi-particule correspondant à la molécule chargée et son champ de polarisation,  $p^+$  pour un trou et  $p^-$  pour un électron) ;
- la recombinaison des porteurs de charge opposée en un état de quasi-particule excité neutre appelé exciton et le transfert d'énergie des excitons ;



- l'émission de lumière par désexcitation radiative de l'exciton.

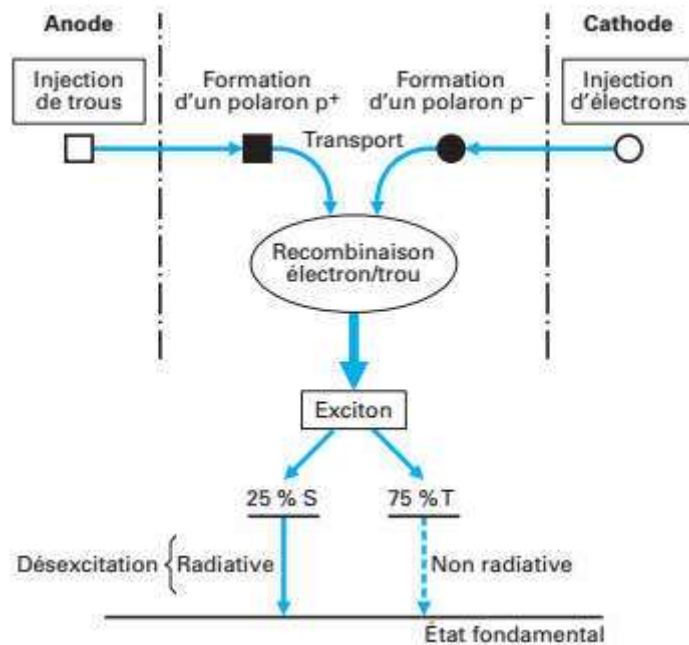


Figure 1.10 : Différentes étapes du processus d'électroluminescence

Les propriétés intrinsèques des matériaux organiques utilisés notamment les niveaux d'énergie et la mobilité des porteurs de charge ont un effet déterminant sur les processus susmentionnés et sur les performances de l'OLED telles que sa tension seuil, son efficacité quantique externe et sa luminance.

Les niveaux d'énergie déterminent les hauteurs de barrières énergétiques à franchir par un porteur de charge d'un matériau à l'autre. Des petites barrières énergétiques entre couches adjacentes de l'hétéro structure facilitent la circulation de courant électrique et réduisent la tension seuil. Par ailleurs, la largeur de la bande de gap du milieu émetteur détermine la longueur d'onde d'émission.

### 1.2.3.1. Injection de porteurs de charges

La première étape du processus d'électroluminescence est l'injection des porteurs de charges dans le matériau organique depuis les électrodes. Ces charges peuvent être injectées directement du métal à la couche organique sous l'application d'une différence de potentiel. Ce principe est utilisé dans les diodes électroluminescentes organiques.

Les électrons et les trous sont injectés depuis la cathode et l'anode respectivement vers les bandes LUMO et HOMO des couches organique adjacentes. Ils doivent alors franchir une barrière énergétique à l'interface métal/organique pour pénétrer dans le matériau organique. De façon générale, cette barrière dépend des positions relatives des niveaux énergétiques des bandes HOMO et LUMO du matériau organique (les couches d'injection) et des travaux d'extraction des électrodes correspondantes.

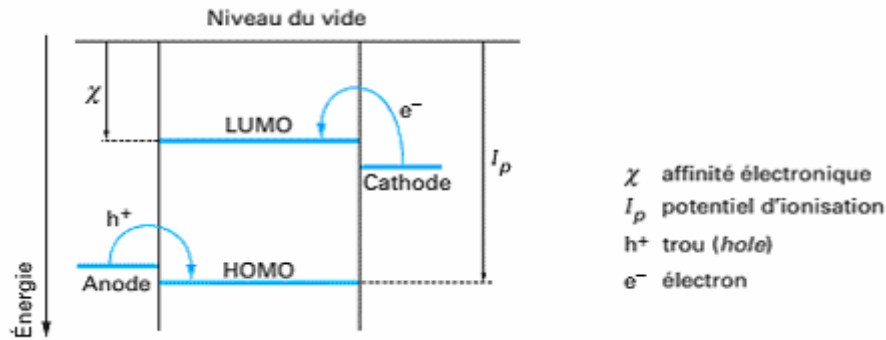


Figure 1.11 : Barrières énergétiques d'injections d'électrons et de trous dans les OLEDs

Le travail d'extraction d'un métal est l'énergie nécessaire pour arracher un électron du métal. Il correspond à l'écart énergétique entre son niveau de FERMÍ et le niveau du vide.

Pour une meilleure injection, il est nécessaire que le travail de sortie de l'anode soit proche du niveau HOMO de la couche organique adjacente et pareillement pour la cathode. Idéalement, le niveau de Fermi de l'électrode doit être aligné avec le niveau HOMO ou LUMO, respectivement dans le cas de l'injection de trous ou d'électrons : on parle alors de contact ohmique.

Deux mécanismes principaux émergent aujourd'hui pour rendre compte de l'injection de charges sous l'effet d'un champ électrique dans les matériaux organiques. Ce sont l'émission thermoionique, lorsque la barrière énergétique est petite et l'effet tunnel lorsque la barrière énergétique est haute mais étroite [24, 25].

#### 1.2.3.1.1. Modèle de Richardson–Schottky : Injection thermoionique

L'émission thermoionique, aussi appelé émission thermoélectronique, suppose que les porteurs de charges seraient propulsés au dessus de la barrière énergétique du fait de l'agitation thermique. La densité de courant est donnée par la loi d'émission de DUSHMAN–RICHARDSON, déduite de la loi de distribution des vitesses des électrons du métal selon MAXWELL–BOLTZMANN.

$$J_{DR} = A^* T^2 \exp\left(-\frac{W}{k_B T}\right) \quad \text{Eq. 1.6}$$

$A^* = 4\pi e m^* k_B^2 / h^3$  est la constante effective de RICHARDSON,  $e$  la charge électronique élémentaire,  $m^*$  la masse effective du porteur de charge dans le semi conducteur,  $k_B$  la constante de BOLTZMANN,  $h$  la constante de PLANCK,  $T$  la température,  $W$  la hauteur de la barrière énergétique,  $E$  le champ électrique, et  $\varepsilon$  la permittivité diélectrique du semi conducteur.

Si l'on prend en compte le fait qu'un champ électrique moyennement intense  $E$  abaisse la barrière énergétique d'une quantité  $\sqrt{e^3 E / (4\pi\epsilon)}$  (effet SCHOTTKY), la loi précédente, avec la nouvelle barrière, devient :

$$J_{RS} = A^* T^2 \exp\left(-\frac{W}{k_B T}\right) \exp\left(\frac{1}{k_B T} \sqrt{\frac{e^3 E}{4\pi\epsilon}}\right) \quad \text{Eq. 1.7}$$

### 1.2.3.1.2. Injection par effet tunnel

En présence d'un champ électrique très intense, les courbes d'énergie potentielle deviennent très obliques et la barrière de potentiel vue par les électrons devient suffisamment étroite pour être franchie selon un processus qui correspond à l'effet tunnel.

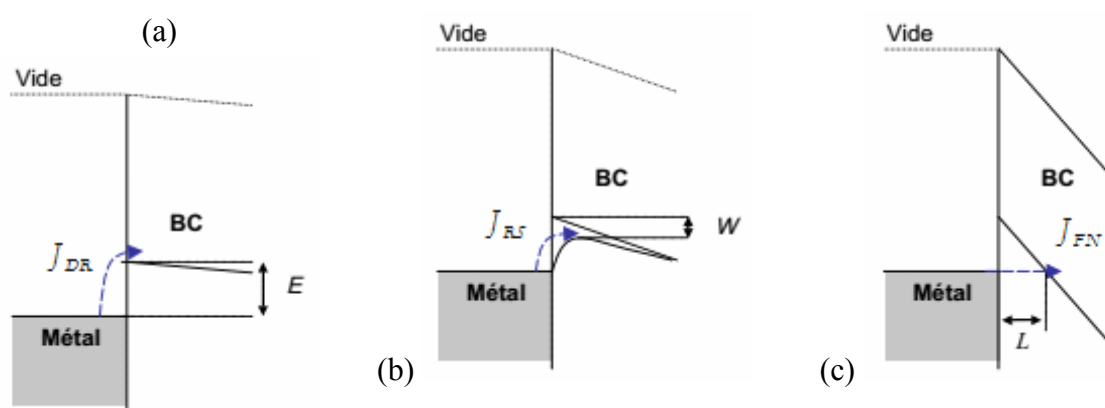


Figure 1.12 : Mécanismes d'injection

(a) Effet thermoionique ; (b) Abaissement de la barrière sous l'effet d'un champ ; (c) effet tunnel

La densité du courant d'émission est alors donnée par l'équation de FOWLER–NORDHEIM.

$$J_{FN} = \frac{e^3 E^2}{8\pi b W} \exp\left(-\frac{8\pi\sqrt{2m^*} W^{3/2}}{3beE}\right) \quad \text{Eq. 1.8}$$

### 1.2.3.2. Transport de charges

Après le franchissement de la barrière d'injection aux interfaces électrodes/couche organique, les porteurs de charges vont se mouvoir par saut dans les couches organiques sous l'effet du champ électrique.

Le mode de conduction dans une OLED dépend fortement de la mobilité des porteurs et de la hauteur des barrières d'injection entre différentes couches. Il peut être :

- soit limité par l'injection lorsque les contacts électrodes/organique ne sont pas ohmiques ; dans ce cas, le courant est donné par l'équation de FOWLER–NORDHEIM ou le modèle de RICHARDSON–SCHOTTKY décrits précédemment, respectivement pour l'injection tunnel ou l'émission thermoionique ;

- soit limité par le volume dans le cas d'un contact supposé ohmique ; l'électrode agit dans ce cas comme un réservoir infinie de charge ; cela suppose que la barrière énergétique pour l'injection de charge soit inférieur à  $0,3eV$  [26, 27].

En cas de conduction limitée par le volume, différents modèles coexistent pour expliquer la caractéristique courant – tension dans les OLED.

#### 1.2.3.2.1. Courant limité par la charge d'espace (Space Charge Limited Current, SCLC)

Le courant limité par la charge d'espace (space charge limited current, SCLC) est valable dans les dispositifs à un seul porteur de charge et dans le domaine des basses tensions. Pour une tension appliquée donnée, la densité de courant obéit à l'équation de MOTT–GURNEY, aussi connu sous l'appellation loi de CHILD [28] :

$$J_{SCLC} = \frac{9}{8} \epsilon \mu \frac{V^2}{d^3} \quad \text{Eq. 1.9}$$

$\epsilon$  est la permittivité diélectrique du matériau organique,  $\mu$  la mobilité du porteur de charge,  $d$  l'épaisseur du matériau organique et  $V$  la tension appliquée.

#### 1.2.3.2.2. Modèle de Poole Frenkel

Pour des champs électriques supérieurs à  $3 \times 10^5$  V/cm, la densité de courant devient plus élevée que celle prévue dans la loi de Child car la mobilité augmente avec le champ électrique [29] et la température [30]. Dans ce cas la mobilité est donnée par la formule de Poole Frenkel [31] :

$$\mu = \mu_0 \exp\left(-\frac{\Delta}{k_B T}\right) \exp(\beta \sqrt{E}) \quad \text{Eq. 1.10}$$

$k_B$  est la constante de BOLTZMANN,  $T$  la température,  $\Delta$  l'énergie d'activation,  $E$  le champ électrique, et  $\beta$ .

#### 1.2.3.3. Recombinaison des porteurs de charges

##### 1.2.3.3.1. Notion d'exciton

On parle de recombinaison lorsqu'un électron et un trou s'apparient par interaction coulombienne pour former un état lié, neutre et excité, appelé exciton avec une énergie de liaison pouvant atteindre 1eV.

Il existe deux modèles pour décrire l'exciton. On parle d'exciton de FRENKEL lorsque l'électron et le trou sont fortement liés et d'exciton de WANNIER-MOTT lorsque les deux porteurs de charges sont faiblement liées. Dans le cas des semi-conducteurs amorphes, il est communément admis que les excitons sont de type FRENKEL car les charges constituant l'exciton sont fortement localisées.

### 1.2.3.3.2. Modèle de recombinaison de Langevin : taux de recombinaison

La recombinaison se fait en deux phases. Il y a d'abord la phase de rapprochement des porteurs de charges puis celle de proprement dite de formation de l'exciton par capture langevine dès lors que la distance électron/trou est inférieure au rayon de capture critique  $r_c$ , appelé distance d'OSANGER, et pour lequel l'énergie d'interaction coulombienne entre les deux charges égale à l'énergie thermique  $k_B T$ .

$$r_c = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_r\epsilon_0 k_B T} \quad [32] \quad \text{Eq. 1.11}$$

$e$  est la charge électronique élémentaire,  $\epsilon_r$  la constante diélectrique du matériau organique,  $\epsilon_0$  la permittivité diélectrique du vide,  $k_B$  la constante de Boltzmann et  $T$  la température.

Dans les semi conducteurs organiques amorphes, le libre parcours moyen des porteurs de charges est de l'ordre de grandeur de la distance inter-sites, soit inférieur à 1nm [32] et donc négligeable devant  $r_c$  qui vaut  $\sim 18.6$ nm à température ambiante ( $T=300$  K) pour un matériau organique typique ( $\epsilon_r = 3$ ). Comme en plus la mobilité des porteurs est très faible, une paire d'électron/trou que leur mouvement amène à une distance inférieure à  $r_c$  sont liés de manière quasi irréversible. Le taux de recombinaison ou de génération d'états excités par unité de volume pour des électrons et trous de densité respectives  $n$  et  $p$  est exprimé dans ce cas par la formule de LANGEVIN [32].

$$R_L = \frac{e}{\epsilon} [\mu_e(E, T) + \mu_b(E, T)] np \quad \text{Eq. 1.12}$$

$\mu_e$  et  $\mu_b$  sont les mobilités des électrons et des trous respectivement.

### 1.2.3.3.3. Le rapport singulet/triplet

Le processus de recombinaison produit de manière aléatoire des excitons de spin 0, appelé singulet ou de spin 1 appelé triplet. L'état triplet ayant une multiplicité de 3, il y a trois fois plus d'états triplets que d'états singulets, soit un ratio d'excitons singulets de 1/4. Ce ratio est un facteur déterminant dans le rendement maximal d'une OLED.

### 1.2.3.4. Mécanismes de transfert d'énergie

Selon certaines conditions, une molécule excitée dite « donneur »  $D^*$  peut transférer de manière non radiative son énergie à une autre dite « accepteur » A. En particulier, il est nécessaire que le spectre d'émission du donneur recouvre partiellement le spectre d'absorption de l'accepteur, afin qu'il existe une correspondance en énergie entre des transitions vibrationnelles du donneur et de l'accepteur (Figure). Deux théories proposées par DEXTER et FÖRSTER permettent de décrire les mécanismes de transfert d'énergie.

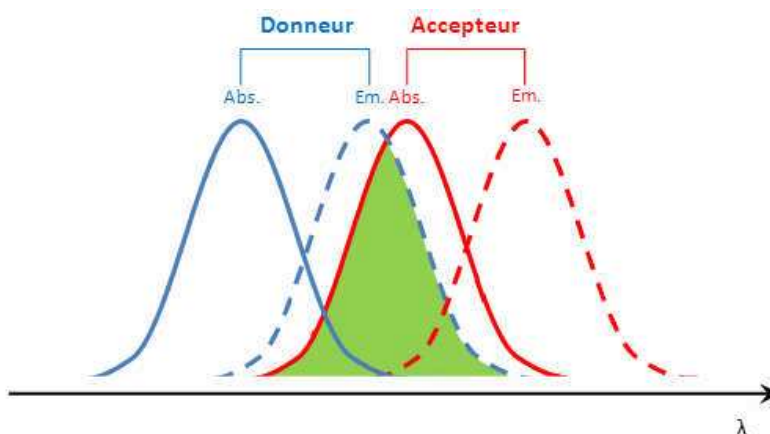


Figure 1.13 : Illustration du recouvrement spectral entre le spectre d'émission du donneur et le spectre d'absorption de l'accepteur

#### 1.2.3.4.1. Transfert de FÖRSTER

Le mécanisme de FÖRSTER [34], bien connu sous l'acronyme FRET (pour *Fluorescence Resonance Energy Transfert*), décrit un transfert d'énergie par interaction dipôle-dipôle à longues distances (>1nm) [35] entre deux molécules. Le recouvrement orbital n'étant pas nécessaire ici, il n'y a pas d'échange d'électrons entre les deux entités mises en jeu. Le passage de la molécule dite « donneur » (D) de l'état fondamental vers l'état excité (D\*) induit une oscillation de son dipôle qui permet ainsi à la molécule dite « accepteur » (A) d'entrer en résonance et d'atteindre un état excité (A\*), tandis que (D\*) retourne concomitamment vers l'état fondamental.

Comme on peut le voir sur la Figure 1.13, les longueurs d'onde d'émission de l'accepteur sont au dessus de celle du donneur, car le retour de l'accepteur à l'état fondamental s'accompagne de l'émission d'un photon de plus basse énergie comparé à l'émission d'un photon du donneur seul, si le transfert d'énergie est total. La vitesse de transfert est décrite par :

$$\Gamma_{\text{FORSTER}} = \frac{9000 \ln(10)}{128 \pi^5 N} \times \frac{\kappa^2 \eta_F}{n^4 \tau_D R_{DA}^6} \times \int f(\lambda) \varepsilon(\lambda) \lambda^4 d\lambda \quad [33] \quad \text{Eq. 1.13}$$

$\kappa$  est le facteur d'orientation des dipôles,  $\eta_F$  est le rendement quantique de fluorescence du donneur,  $N$  est le nombre d'Avogadro,  $n$  est l'indice de réfraction,  $\tau_D$  est la durée de vie de l'état excité du donneur et  $R_{DA}$  est la distance séparant les deux molécules. L'intégrale exprime le degré de recouvrement spectral entre l'émission du donneur et l'absorption de l'accepteur, avec  $\lambda$  la longueur d'onde,  $f(\lambda)$  le spectre de fluorescence normalisée du donneur et  $\varepsilon(\lambda)$  le spectre d'absorption de l'accepteur (exprimé en terme de coefficient d'absorption molaire).

La relation précédente indique qu'il est important d'avoir un recouvrement important entre les deux spectres pour garantir un transfert d'énergie efficace. Par ailleurs, étant donné que

le taux de transfert d'énergie dépend fortement de la distance entre les molécules ( $\sim R_{DA}^{-6}$ ), l'intégrale est souvent exprimée en fonction du rayon effectif de FÖRSTER, noté  $R_0$  et définit par :

$$R_0 = \left[ \frac{9000 \ln(10)}{128 \pi^5 N} \times \frac{\kappa^2 \eta_F}{n^4 \tau_D} \times \int f(\lambda) \varepsilon(\lambda) \lambda^4 d\lambda \right]^{1/6} \quad \text{Eq. 1.14}$$

Ce qui ramène l'équation du taux de transfert à :

$$\Gamma_{\text{FORSTER}} = \frac{1}{\tau_D} \left( \frac{R_0}{R_{DA}} \right)^6 \quad \text{Eq. 1.15}$$

Le rayon effectif de FÖRSTER  $R_0$  se définit comme la distance effective donneur / accepteur correspondant à un taux de transfert équivalent au taux d'émission spontanée du donneur.

$R_0$  peut atteindre des valeurs allant jusqu'à 100 Å [35, 36] selon la nature des molécules. Au delà l'efficacité de transfert chute.

#### 1.2.3.4.2. Transfert de DEXTER

Ce processus de transfert décrit par DEXTER [42] repose sur un mécanisme de double échange d'électrons entre donneur et accepteur, ce qui implique, à l'inverse du mécanisme de FÖRSTER, la nécessité d'un recouvrement entre les orbitales HOMO et LUMO des deux entités et donc une proximité spatiale entre eux. Le transfert d'énergie correspond à l'échange d'un électron de  $D^*$  vers  $A^*$  qui est associé à l'échange simultané d'un électron de  $A$  vers  $D$  (Figure 1.11). Comme dans le mécanisme de FÖRSTER, la vitesse de transfert de ce mécanisme est proportionnelle au degré de recouvrement spectral entre l'émission du donneur et l'absorption de l'accepteur, à la différence que le spectre d'absorption dans ce cas est :

$$\Gamma_{\text{DEXTER}} = K \exp\left(\frac{-2R_{DA}}{L}\right) \times \int f(\lambda) \varepsilon(\lambda) \lambda^4 d\lambda \quad \text{Eq. 1.16}$$

$K$  est un facteur proportionnel au recouvrement orbital et  $L$  la somme des rayons de VAN DER WAALS des deux molécules.

La dépendance du taux de transfert à la distance  $R_{DA}$  étant exponentielle, ce mécanisme est plus rapide sur les courtes distances ( $<10\text{Å}$ ) ou en présence d'un large recouvrement orbital.

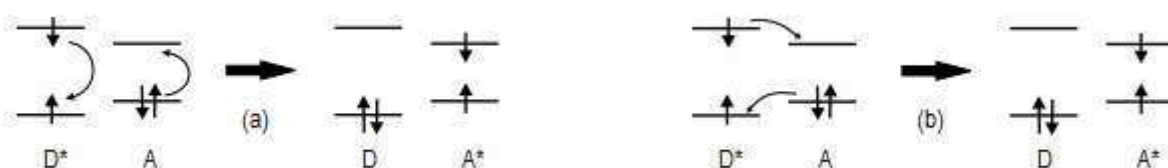


Figure 1.14 : Schématisation des mécanismes de transfert  
(a) Transfert de Förster ; (b) Transfert de Dexter

### 1.2.3.5. Désactivation de l'exciton

L'exciton une fois formé, se désactive soit de manière radiative, soit de manière non radiative. Ces deux processus sont en compétition et leur poids relatif conditionne l'efficacité finale de l'OLED.

La désactivation radiative d'un singulet donne lieu au phénomène de fluorescence, avec un rendement théorique pouvant atteindre 100%. Quant à un exciton triplet, sa désactivation radiative donne lieu à la phosphorescence avec cependant un rendement quasi nul pour les matériaux fluorescents. Par conséquent, l'efficacité quantique interne maximale des dispositifs à base des matériaux fluorescents est limitée théoriquement à 25% compte tenu du ratio de génération d'excitons singulet / triplet.

### 1.2.3.6. Durée de vie et rendement de fluorescence

La durée de vie  $\tau$  de l'état excité détermine la fenêtre de temps pendant laquelle il interagit avec son environnement (transitions radiatives et non radiatives). Expérimentalement, elle peut être déterminée par une mesure de la décroissance de l'intensité de fluorescence. Elle décrit une courbe mono-exponentielle indépendante de la concentration, à condition qu'une seule espèce soit présente à l'état excité et répond à une équation de la forme :

$$I_{fluo}(t) = I_0 \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) \quad \text{Eq. 1.17}$$

$I_0$  est l'intensité de fluorescence initiale et  $\tau$  est la durée de vie.

Si on associe aux processus de désactivation radiative et non radiative d'un exciton singulet respectivement les durées de vie  $\tau_R$  et  $\tau_{NR}$ , alors les fréquences des transitions radiatives et non radiatives sont respectivement  $\nu_R = 1/\tau_R$  et  $\nu_{NR} = 1/\tau_{NR}$ . La durée de vie de l'état excité s'exprime en fonction :

$$\tau = \frac{1}{\nu_R + \nu_{NR}} = \frac{1}{\frac{1}{\tau_R} + \frac{1}{\tau_{NR}}} \quad \text{Eq. 1.18}$$

Le rendement quantique de fluorescence correspond au rapport entre le nombre de photons émis durant le temps de vie de l'état excité et le nombre de photons initialement absorbés. Il est défini comme suit :

$$\eta = \frac{1}{1 + \frac{\tau_R}{\tau_{NR}}} \quad \text{Eq. 1.19}$$



### 1.3. RAPPELS SUR LES LIGNES DE TRANSMISSION

Ce paragraphe consacré à l'électronique hyperfréquence a pour objectif d'identifier des solutions pour augmenter la rapidité des OLEDs et pour délivrer le maximum d'énergie d'une impulsion à l'OLED. Ce paragraphe s'appuie de façon générale sur les références [43-48].

#### 1.3.1. Ligne de transmission : définition

Un support de transmission est une structure qui permet de guider des ondes électromagnétiques. On peut distinguer les guides d'onde et les lignes à conducteurs.

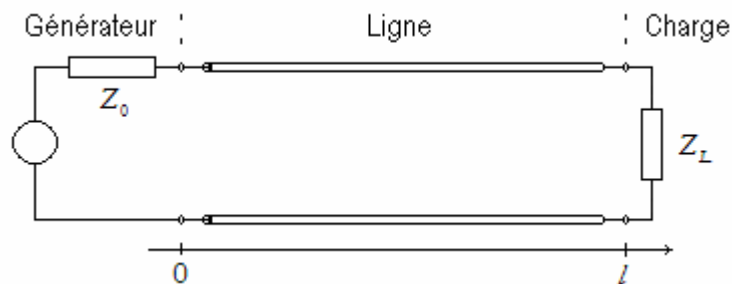


Figure 1.15 : Schématisation d'une ligne de transmission connectée sur un générateur et une charge

Une ligne de transmission à conducteur est très souvent connectée à une extrémité sur un générateur et se termine à l'autre extrémité sur une charge voir *Figure 1.15*. Elle est constituée de deux ou plusieurs conducteurs isolés servant à acheminer un signal électrique, du générateur vers la charge. Elle peut également, dans certaines gammes de fréquences, être utilisée pour réaliser des impédances (transformateurs d'impédance), des filtres, etc.

Une ligne de transmission est caractérisée par son impédance caractéristique et sa constante de propagation qui précise les pertes linéiques sur la ligne et la vitesse de propagation des signaux.

Les exemples les plus courants sont le câble coaxial (*Figure 1.16a*), la ligne bifilaire (*Figure 1.16b*) et la paire torsadée. Sur les circuits imprimés et les circuits intégrés, on trouve plus souvent la ligne microruban (*Figure 1.16c*), la ligne à fente (*Figure 1.16e*), et la ligne coplanaire (*Figure 1.16d*).

#### 1.3.2. Modèle d'une ligne de transmission : paramètres primaires

En hautes fréquences, les longueurs d'onde de travail sont en général comparables ou faibles vis à vis de la longueur de la ligne de transmission. Dans ces conditions, les amplitudes de la tension et du courant fluctuent en fonction de l'abscisse  $z$  du point considéré le long de la ligne. Il n'est donc plus possible de décrire le circuit par les lois de Kirchoff. On fait alors l'approximation qui consiste à décomposer la ligne en une cascade de tronçons élémentaires identiques de longueur  $\Delta z$  infinitésimale (*Figure 1.17a*) – ou suffisamment faible par rapport aux longueurs d'onde de travail. Chacun élément de ligne

ainsi défini peut alors représenter par un quadripôle à éléments localisés  $R\Delta z$ ,  $L\Delta z$ ,  $G\Delta z$  et  $C\Delta z$ , voir (Figure 1.17b).

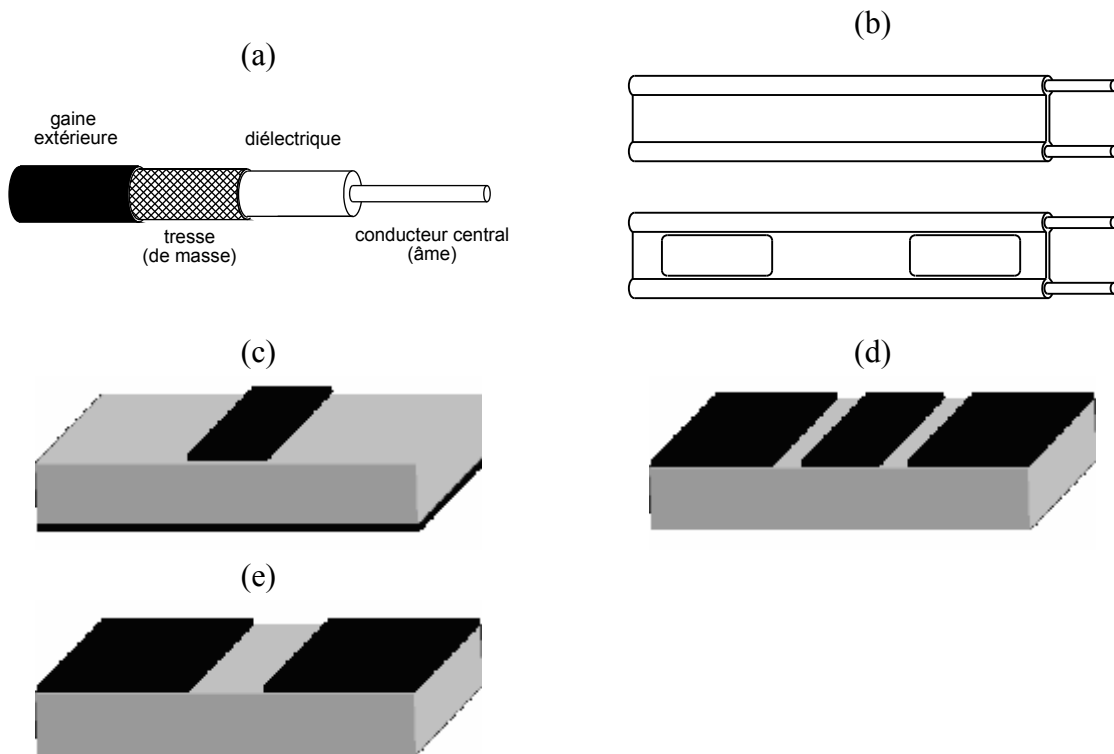


Figure 1.16 : Quelques exemples de lignes de transmission

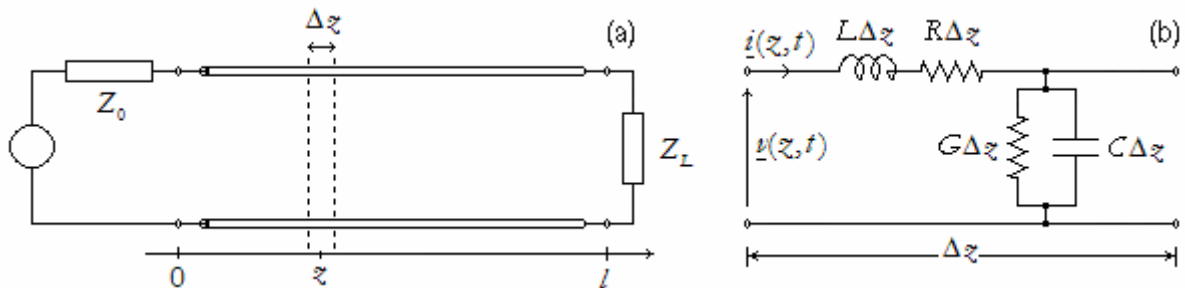


Figure 1.17 : Découpage de la ligne en tronçons élémentaire (a) et caractéristiques localisés (b)

Indépendamment de sa structure, le modèle d'une telle ligne se caractérise par les quatre constantes  $R$ ,  $L$ ,  $G$  et  $C$ , appelés paramètres primaires (ou paramètres distribués) de la ligne. Ils ont chacun un rôle physique bien distinct et se définissent par unité de longueur de la ligne comme suit :

- $R[\Omega/m]$  est la résistance linéique « série » des conducteurs ; elle représente les pertes dans les conducteurs ;
- $L[H/m]$  est l'inductance linéique « série » de la ligne ; elle caractérise la présence d'un flux magnétique variable autour des structures conductrices.

- $G[\Omega^{-1}/m]$  est la conductance linéique « shunt » ; elle représente les pertes diélectriques et les défauts d'isolation de la ligne ; c'est l'inverse d'une résistance de fuite à travers l'isolant ;
- $C[F/m]$  est la capacité linéique « shunt » ; elle représente la capacité parasite formée par le diélectrique et les conducteurs.

$L$  et  $C$  sont associés au stockage d'énergie électromagnétique à l'abscisse considéré de la ligne ; cette énergie se transmet de proche en proche par le phénomène de propagation. A l'inverse,  $R$  et  $G$ , correspondent à une dissipation d'énergie électrique sous forme de chaleur, avec pour effet d'affaiblir l'amplitude de l'onde dans le sens de la propagation.

En pratique, la bonne qualité des conducteurs utilisés et la nature des diélectriques permettent de se placer dans un contexte de ligne dite « sans pertes » – c'est-à-dire  $R = 0$  et  $G = 0$ , ou plus rigoureusement de lignes à faibles pertes. Dans ce cas, on a  $R \ll \omega L$  et  $G \ll \omega C$ .

Le modèle de ligne ci avant est valable pour toute ligne de transmission présentant un mode de propagation transverse électromagnétique (TEM) – c'est à dire que les champs électrique et magnétique sont perpendiculaires à l'axe de la ligne selon lequel s'effectue la propagation.

### 1.3.3. Equation de propagation

L'application des lois de Kirchoff sur l'élément de ligne de la *Figure 1.17* repéré par son abscisse  $\underline{x}$  permet de décrire les variations de tension et de courant, lorsque  $\Delta \underline{x}$  tend vers 0, par :

$$\begin{cases} -\frac{\partial \underline{v}}{\partial \underline{x}} = R \underline{i} + L \frac{\partial \underline{i}}{\partial t} \\ -\frac{\partial \underline{i}}{\partial \underline{x}} = G \underline{v} + C \frac{\partial \underline{v}}{\partial t} \end{cases} \quad \text{Eq. 1.20}$$

Si on différentie la première ligne de ce système d'équations Eq. 1.20 par rapport à la variable espace  $\underline{x}$  et la deuxième par rapport à la variable temps  $t$ , on arrive à isoler la tension  $\underline{v}$  par combinaison avec les nouvelles équations obtenues. Et en inversant les rôle des deux équations dans la démarche précédente, on arrive à faire de même pour le courant  $\underline{i}$ . On obtient alors :

$$\begin{cases} \frac{\partial^2 \underline{v}}{\partial \underline{x}^2} = LC \frac{\partial^2 \underline{v}}{\partial t^2} + (RC + GL) \frac{\partial \underline{v}}{\partial t} + RG \underline{v} \\ \frac{\partial^2 \underline{i}}{\partial \underline{x}^2} = LC \frac{\partial^2 \underline{i}}{\partial t^2} + (RC + GL) \frac{\partial \underline{i}}{\partial t} + RG \underline{i} \end{cases} \quad \text{Eq. 1.21}$$

Ce système d'équations différentielles Eq. 1.21 montre que la tension et le courant sur la ligne sont décrits par la même relation appelée « équations des télégraphistes ». Elles admettent des solutions analytiques pour des cas particuliers de lignes sans pertes et du régime harmonique.

### 1.3.4. Cas particulier du régime harmonique

#### 1.3.4.1. Constante de propagation

Dans le cas particulier du régime harmonique, tension et courant peuvent s'écrire sous la forme :

$$\begin{cases} \underline{v}(t, z) = \underline{V}(z)\exp(j\omega t) \\ \underline{i}(t, z) = \underline{I}(z)\exp(j\omega t) \end{cases} \quad \text{Eq. 1.22}$$

où  $\underline{V}(z)$  et  $\underline{I}(z)$  sont les phaseurs de tension et de courant.

Si on élimine la variable temps, l'équation des télégraphistes se simplifie sous la forme d'une équation homogène de Helmholtz.

$$\begin{cases} \frac{d^2 \underline{V}}{dz^2} - \gamma^2 \underline{V} = 0 \\ \frac{d^2 \underline{I}}{dz^2} - \gamma^2 \underline{I} = 0 \end{cases} \quad \text{Eq. 1.23}$$

avec

$$\gamma = \alpha + j\beta = [(R + jL\omega)(G + jC\omega)]^{1/2} \quad \text{Eq. 1.24}$$

$\gamma$  est appelé exposant linéique (ou constante) de propagation de la ligne. C'est une grandeur complexe dont la partie réelle  $\alpha [N_p / m]$  représente l'affaiblissement linéique ou constante d'atténuation et la partie imaginaire  $\beta [rad / m]$  le déphasage linéique ou constante de phase. La vitesse de propagation des ondes sur la ligne est donnée par :

$$v_\varphi = \frac{\omega}{\beta} \quad \text{Eq. 1.25}$$

Pour une ligne sans pertes,  $\alpha = 0$  et  $\beta = \omega\sqrt{LC}$

#### 1.3.4.2. Solution de l'équation de propagation

Les solutions  $\underline{V}(z)$  et  $\underline{I}(z)$  aux équations de propagation Eq. 1.23 s'écrivent :

$$\begin{cases} \underline{V}(z) = \underline{V}_i e^{-\gamma z} + \underline{V}_r e^{+\gamma z} \\ \underline{I}(z) = \underline{I}_i e^{-\gamma z} + \underline{I}_r e^{+\gamma z} \end{cases} \quad \text{Eq. 1.26}$$

où  $\underline{V}_i, \underline{I}_i, \underline{V}_r, \underline{I}_r$  sont des constantes d'intégration, liées par les relations :

$$\frac{\underline{V}_i}{\underline{I}_i} = -\frac{\underline{V}_r}{\underline{I}_r} = \left[ \frac{R + j\omega L}{G + j\omega C} \right]^{1/2} \quad \text{Eq. 1.27}$$

Ces expressions de tension et de courant du système d'équations Eq. 1.26 mettent en évidence la superposition de deux ondes se propageant en sens inverses :

- une onde progressive c'est-à-dire qui se propage dans le sens des abscisses croissant, caractérisée par le terme  $e^{-\gamma z}$  dont l'amplitude s'atténue lorsqu'on s'éloigne de la source ;
- une onde régressive c'est-à-dire qui se propage dans le sens des abscisses décroissant, caractérisée par le terme  $e^{+\gamma z}$  dont l'amplitude décroît lorsqu'on s'éloigne de la charge.

### 1.3.4.3. Impédance caractéristique d'une ligne

Pour définir l'impédance caractéristique d'une ligne, on va supposer que celle-ci est semi infinie, c'est-à-dire qu'elle commence à la source et s'étend jusqu'à l'infini. Une telle ligne se caractériserait par le fait que le rapport de la tension au courant en tout point de la ligne est constant et égale à  $\underline{V}_i / \underline{I}_i$ , voir Eq. 1.27, car il n'y aurait pas d'onde régressive. Ce rapport, qui est homogène à une impédance, est appelé impédance caractéristique de la ligne et se définit par :

$$Z_c = \sqrt{\frac{R + j\omega L}{G + j\omega C}} \quad \text{Eq. 1.28}$$

Par définition, l'impédance caractéristique d'une ligne est donc l'impédance qu'on mesurerait à l'entrée de la dite ligne si elle était infiniment longue. Cette définition peut sembler dépourvue de sens pratique, car dans le monde réel, la longueur de la ligne est toujours finie. Il est donc possible que l'onde progressive soit réfléchiée par son impédance de charge et engendre une onde régressive, à l'opposé de la ligne semi infinie où elle n'existe pas. Si on fait varier cette impédance de charge, l'amplitude de l'onde réfléchiée varie également ; et pour une impédance particulière unique l'amplitude de l'onde réfléchiée est nulle. Dans ce cas particulier, l'onde progressive étant entièrement absorbée par la charge ; la ligne est alors perçue de la source comme étant infiniment longue avec ce que cela implique sur le rapport de la tension au courant en tout point de la ligne. On peut alors définir l'impédance caractéristique comme la valeur de l'impédance qu'il faut connecter au bout d'une ligne afin qu'elle se comporte comme une ligne semi infinie. C'est aussi l'impédance qu'on mesurerait en tout point de la ligne lorsque la ligne se termine sur cette même impédance.

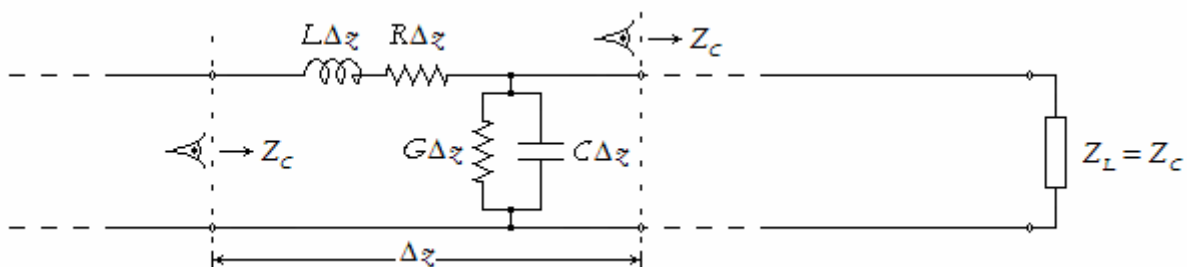


Figure 1.18 : Illustration de l'impédance caractéristique d'une ligne  
l'impédance mesurée en tout point de la ligne est la même si la ligne se termine sur son impédance caractéristique

Au regard de cette deuxième définition, l'impédance mesurée sur une ligne terminée par son impédance caractéristique serait la même que l'on se place à l'entrée du tronçon élémentaire de ligne repérée par l'abscisse  $z$  ou à sa sortie (voir *Figure 1.18*), on peut écrire :

$$Z_C \underset{A_z \rightarrow 0}{=} (R + j\omega L)A_z + Z_C // \left[ \frac{1}{(G + j\omega C)A_z} \right] \quad \text{Eq. 1.29}$$

En développant on arrive à :

$$Z_C^2 - [(R + j\omega L)A_z] \times Z_C - \frac{R + j\omega L}{G + j\omega C} \underset{A_z \rightarrow 0}{=} 0 \quad \text{Eq. 1.30}$$

et on retombe finalement sur l'expression  $Z_C = \sqrt{(R + j\omega L)/(G + j\omega C)}$  de la relation Eq. 1.28.

Il apparaît clairement que l'impédance caractéristique d'une ligne est complexe. En pratique cependant, on se place en général dans le contexte de ligne sans pertes ou à faibles pertes, ce qui amène alors à une impédance caractéristique réelle donnée par :

$$Z_C = \sqrt{\frac{L}{C}} \quad \text{Eq. 1.31}$$

Il est important qu'une ligne se termine sur une impédance de charge pour éviter toute réflexion vers la source. Une telle ligne est dite adaptée.

#### 1.3.4.4. Réflexion sur la ligne

La réflexion survient lorsqu'une onde se propageant sur la ligne dans un sens rencontre une charge ou une discontinuité. Il en résulte une onde réfléchie dont le rapport du phaseur de tension à celui de la tension incidente est appelé coefficient de réflexion.

Si à l'aide d'un générateur on applique une tension  $\underline{V}_0$  à l'entrée d'une ligne de transmission terminée sur une charge  $Z_L$  quelconque (*Figure 1.18*), l'onde qui en résulte se propage normalement sur la ligne avec un rapport de la tension au courant constant et égale  $Z_C$  tant qu'il n'a pas atteint la charge.

Une fois qu'elle atteint la charge avec une tension  $\underline{V}_0 e^{-\gamma l}$ , il faut aussi satisfaire la condition  $\underline{V}_L / \underline{I}_L = Z_L$ . Dès lors, si la charge n'est pas adaptée à la ligne – c'est-à-dire si  $Z_L \neq Z_C$ , alors une partie de l'onde est réfléchie en direction de la source. Les relations Eq. 1.26 et Eq. 1.27 permettent alors d'écrire :

$$\begin{cases} \underline{V}_L = \underline{V}_i e^{-\gamma l} + \underline{V}_r e^{+\gamma l} \\ \underline{I}_L = \frac{\underline{V}_i e^{-\gamma l} - \underline{V}_r e^{+\gamma l}}{Z_C} \end{cases} \quad \text{Eq. 1.32}$$

Si on note  $\Gamma_L$  le coefficient de réflexion de la charge, alors on peut écrire :

$$\Gamma_L = \frac{\underline{V}_r e^{+\gamma l}}{\underline{V}_i e^{-\gamma l}} = \frac{\underline{V}_r}{\underline{V}_i} e^{+2\gamma l} \quad (\text{définition}) \quad \text{Eq. 1.33}$$

et en combinant les relations Eq. 1.33 et Eq. 1.32, on trouve :

$$\Gamma_L = \frac{Z_L - Z_C}{Z_L + Z_C} \quad \text{Eq. 1.34}$$

Cette relation relie l'impédance à son coefficient de réflexion.

#### 1.3.4.5. Coefficient de transmission

Le coefficient de transmission d'une charge est le rapport des tensions de l'onde sur la charge à l'onde incidente.

$$\underline{T}_L = \frac{\underline{V}_i e^{-\gamma l} + \underline{V}_r e^{+\gamma l}}{\underline{V}_i e^{-\gamma l}} = 1 + \Gamma_L \quad \text{Eq. 1.35}$$

#### 1.3.4.6. Puissance transportée par une ligne

La puissance électrique transportée sur la ligne en un point quelconque d'abscisse  $z$  est définie par :

$$P = \frac{1}{2} \Re[\underline{V}(z) \times \underline{I}^*(z)] \quad \text{Eq. 1.36}$$

Sous l'hypothèse d'une ligne sans pertes, cette puissance est indépendante de l'abscisse  $z$  et égale à la puissance totale délivrée à la charge.

$$P = \frac{1}{2} \Re[\underline{V}(l) \times \underline{I}^*(l)] = \frac{1}{2} \frac{|\underline{V}_0|^2}{Z_C} (1 - |\Gamma_L|^2) \quad \text{Eq. 1.37}$$

C'est la différence entre la puissance incidente et la puissance réfléchiée par la charge. Elle est maximale lorsque le coefficient de réflexion est nul, c'est-à-dire si la charge est adaptée à la ligne.

Lorsqu'il n'y a pas adaptation, une partie de la puissance incidente est réfléchiée vers la source. On parle alors de perte d'adaptation ou de réflexion.

#### 1.3.4.7. Impédance à l'entrée d'une ligne

L'impédance en un point quelconque de la ligne d'abscisse  $z$  est définie par le rapport de la tension au courant en ce point. En particulier au niveau de la source, à l'entrée d'une ligne terminée sur une impédance  $Z_L$ , elle vaut (Eq. 1.26) :

$$Z_0 = \left. \frac{\underline{V}(z)}{\underline{I}(z)} \right|_{z=0} = \frac{\underline{V}_i + \underline{V}_r}{\underline{I}_i + \underline{I}_r} = \dots = Z_C \frac{Z_L + Z_C \operatorname{th}(\gamma l)}{Z_C + Z_L \operatorname{th}(\gamma l)} \quad \text{Eq. 1.38}$$

Dans le cas d'une ligne sans pertes, cette relation devient :

$$Z_0 = Z_C \frac{Z_L + jZ_C \tan(\beta l)}{Z_C + jZ_L \tan(\beta l)} \quad \text{Eq. 1.39}$$

Quelques cas particuliers intéressants sont ceux des lignes terminées sur un court-circuit ou sur un circuit ouvert. Le *Tableau 1.2* montre quelques exemples d'impédances équivalentes à l'entrée de telles lignes. Une ligne sans perte quart d'onde terminée par un court-circuit est vue à son entrée comme un circuit ouvert ; si sa longueur vaut  $\lambda/8$ , alors son comportement à son entrée est celle d'une inductance. A l'inverse, une ligne sans perte quart d'onde terminée par un circuit ouvert est équivalente à un court-circuit à son entrée ; si sa longueur vaut  $\lambda/8$ , elle se comporte comme une capacité.

Tableau 1.2 : Cas particuliers d'impédance équivalente à l'entrée d'une ligne de transmission

	Ligne terminée sur un court-circuit ( $Z_L = 0$ )	Ligne terminée sur un circuit ouvert ( $Z_L = \infty$ )
$l = \lambda/4$ [ $\lambda/2$ ]	$Z_0 = \infty$ , circuit ouvert	$Z_0 = 0$ , court-circuit
$l = \lambda/8$ [ $\lambda/2$ ]	$Z_0 = jZ_C$ (réactance inductive)	$Z_0 = -jZ_C$ (réactance capacitive)

Ces quelques cas montrent qu'il est possible de réaliser des équivalents de composants passifs de type inductance ou de type capacité à partir de tronçons de ligne en court-circuit ou en circuit ouvert. Ce type de composant est couramment utilisé dans les dispositifs d'adaptation d'impédance.

### 1.3.4.8. Adaptation d'impédance

Il a été montré précédemment que la puissance transmise à la charge est maximale lorsque le coefficient de réflexion est nul. L'onde incidente est alors totalement transmise à la charge. Ceci est un résultat important dans les applications hautes fréquences. Idéalement la charge doit donc être égale à l'impédance caractéristique de la ligne. Sinon, il faut insérer sur la ligne un dispositif (réseau d'impédance) permettant de modifier la valeur apparente de la charge, c'est le principe de l'adaptation d'impédance de charge.

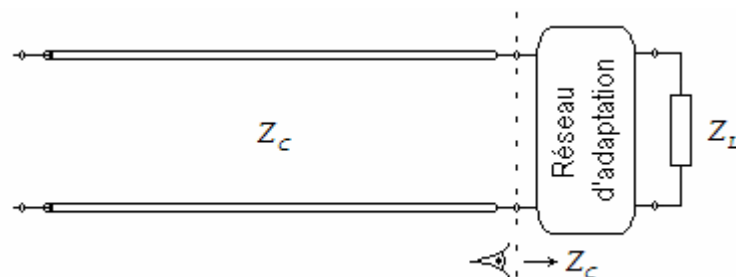


Figure 1.19 : Illustration de l'insertion d'un dispositif d'adaptation entre la ligne et la charge : toute la partie de la ligne en amont de la charge est adaptée



Les dispositifs d'adaptation d'impédance sont généralement des associations en série, en parallèle, en  $T$  ou en  $\Pi$  d'éléments localisés (capacité, inductances) ou distribués (stubs ou tronçons de lignes en court circuit ou en circuit ouvert).

### 1.3.5. La ligne coplanaire

La ligne de transmission coplanaire, dite aussi guide coplanaire et ou ligne CPW (Coplanar Waveguide), a été proposée pour la première fois comme une alternative à la ligne microruban [49]. Elle est constituée de trois rubans métalliques placés sur le même plan d'un substrat diélectrique et séparés par des fentes coplanaires. Le ruban central véhicule le signal tandis que les deux rubans latéraux servent de plans de masse.

La ligne coplanaire présente plusieurs avantages. Elle présente une grande souplesse de conception et de réalisation quand il s'agit de synthétiser son impédance caractéristique, propriété importante lorsqu'on recherche une adaptation d'impédance par exemple. La masse et le signal étant sur le même plan, elle montre également une facilité d'intégration avec d'autres circuits sans avoir recours aux « via » métalliques. De plus, elle facilite la réalisation des composants passifs.

Ce type de ligne est parfaitement adapté pour la réalisation sur substrat de verre du circuit d'excitation d'OLED à émission par le substrat. Les techniques de calculs de telles lignes, notamment la largeur du ruban central et celle des fentes qui le sépare des plans de masse, sont présentées au paragraphe 2.2.2.

## CONCLUSION

Ces rappels bibliographiques nous ont permis de mieux cerner les pistes à suivre pour atteindre nos objectifs. Pour être en mesure de délivrer des impulsions électriques courtes et intenses à des OLED présentant des faibles temps de réponse, il faut prendre en compte plusieurs points :

- La fragilité des semi-conducteurs organiques impose de réaliser des éventuelles étapes de structuration avant le dépôt, c'est à dire directement sur l'électrode transparentes et conductrices et son substrat.
- L'utilisation de ligne d'impédance caractéristique compatible avec le générateur d'impulsion et sa connectique permet de délivrer des impulsions électriques en minimisant les réflexions.
- Le type de ligne qui s'applique le mieux aux supports d'OLED, faits de verre recouvert d'une couche transparente et conductrice d'ITO, sont les lignes coplanaires (CPW).

Pour préciser davantage les objectifs, il convient de comprendre quels paramètres précisément vont permettre d'agir sur le temps de réponse de l'OLED. Pour cela une modélisation de l'OLED est nécessaire et sera introduite dans le chapitre suivant.

## REFERENCES

---

- 1 C. Gärtner, *Organic laser diodes : modelling and simulation*. Karlsruhe: Universitätsverl, 2009.
- 2 Y. Wang, *Theory of Organic Semiconductor Lasers*, in *Low Threshold Organic Semiconductor Lasers*, Cham : Springer International Publishing, pp. 9–32, 2014.
- 3 S. Schols, *Device Architecture and Materials for Organic Light-Emitting Devices*, Dordrecht : Springer Netherlands, 2011.
- 4 J. Clayden, N. Greeves, S. Warren, *Organic chemistry (2nd ed.)*, Oxford University Press, 2001.
- 5 M. Pope, C. E. Swenberg, *Electronic processes in organic crystals and polymers*. Oxford Univ. Press, New York, 1999.
- 6 J. Frank, *Elementary processes of photochemical reactions*. *Transactions of the Faraday Society*, 21, pp. 536–542, 1925.
- 7 Stokes, G. G. *Phil. Trans. R. Soc. (London)*, 142, pp. 463-562, 1852.
- 8 J. R. Lakowicz, *Principles of fluorescence spectroscopy*, New York: Plenum Press, 1983.
- 9 G. N. Lewis, M. Kasha, *Phosphorescence and the triplet state*. *Journal of the American Chemical Society*, vol. 66 no. 12, pp. 2100–2116, 1944.
- 10 M. Kasha, *Phosphorescence and the role of the triplet state in the electronic excitation of complex molecules*. *Chemical Reviews*, vol. 41, no. 2, pp. 401–419, 1947.
- 11 S. Verlaak, *Small-molecule organic thin-film transistors: growth, charge transport and some applications*, PhD thesis, K. U. Leuven, 2004.
- 12 M. Pope, C.S. Swenberg, *Electronic Processes in Organic Crystals and Polymers*, 2nd ed., Oxford University Press, New York, 1999.
- 13 V. Arkhipov, I. Fishchuk, A. Kadashchuk, H. Bässler, *Photophysics of Molecular Materials: From Single Molecules to Single Crystals*, Chap. 6 : *Charge transport in disordered organic semiconductors*, Wiley, New York, 2006.
- 14 P.G.L. Comber, W.E. Spear, *Electronic transport in amorphous silicon films*. *Phys. Rev. Lett.* vol. 25, no. 8, pp. 509–511, 1970.
- 15 G. Horowitz, R. Hajlaoui, P. Delannoy, *Temperature-dependence of the field-effect mobility of sexithiophene—determination of the density of traps*. *J. Phys.* vol. no. 4, pp. 355–371, 1995.
- 16 M. Mottaghi, G. Horowitz, *Field-induced mobility degradation in pentacene thin-film transistors*. *Org. Electron.* 7, pp. 528–536, 2006.
- 17 H. Bässler, *Charge transport in disordered organic photoconductors: a Monte-Carlo simulation study*. *Phys. Status Solidi B*, vol. 175, no. 1, pp. 15–56, 1993.
- 18 M.C.J.M. Vissenberg, M. Matters, *Theory of the field-effect mobility in amorphous organic transistors*. *Phys. Rev. B*, vol. 57, no. 20, pp. 12964–12967, 1998.
- 19 A. Bernanose, M. Comte, P. Vouaux, *A new method of light emission by certain organic compounds*. *J. Chim. Phys.* 50, 64, 1953.
- 20 A. Bernanose, P. Vouaux, *Organic electroluminescence type of emission*. *J. Chim. Phys.* 50, 261, 1953.
- 21 C. W. Tang and S. A. VanSlyke, "Organic electroluminescent diodes," *Applied Physics Letters*, vol. 51, no. 12, pp. 913–915, sep. 1987.
- 22 F. So, J. Kido, P. Burrows, *Organic light-emitting devices for solid-state lighting*. *Mater. Res. Soc. Bull.* 33, pp. 663–669, 2008.

- 23 L. Zeng, Étude théorique et expérimentale de  $\mu$ -OLED en régime impulsionnel à très haute densité de courant, Thèse de Doctorat, Université Paris 13, 2016.
- 24 P. Le Barny, "Électroluminescence des matériaux organiques. Principes de base", Technique de l'Ingénieur, N406, 2006.
- 25 W. Brütting, S. Berleb, et A. G. Mückl, « Device physics of organic light-emitting diodes based on molecular materials », Organic electronics, vol. 2, n° 1, pp. 1–36, 2001.
- 26 P.S. Davids, I.H. Campbell, D.L. Smith, "Device model for single carrier organic diodes", J. Appl. Phys. vol. 82, n° 12, p. 6319-6325, 1997.
- 27 U.Wolf, V.I.Arhipov, and H.Bassler, "Current injection from a metal to a disordered hopping system. I. Monte Carlo simulation", Phys.Rev.B, vol. 59, p. 7507, 1999.
- 28 M. A. Lampert, P. Mark. Current injection in solids, Academic Press, New York, 1970.
- 29 D.M. Pai, B.E. Spingett, Rev. Mod . Phys. 65, 163, 1993.
- 30 P.M. Borsenberger, L. Pautmeier, H. Bassler, "Charge Transport in Disordered Molecular Solids" J. Chem. Phys. 94, p. 5447, 1991.
- 31 D.M. Pai. J. Chem. Phys. 52, p. 2285, 1970.
- 32 J. Kalinowski, "Organic light-emitting diodes: Principles, characteristics, and processes", New York: Marcel Dekker, 2005.
- 33 S. Schols, "Device Architecture and Materials for Organic Light-Emitting Devices" Dordrecht: Springer Netherlands, 2011.
- 34 T. H. Förster, "Transfer mechanisms of electronic excitation", Discuss. Faraday Soc., 27, pp. 7-17, 1959.
- 35 M.V. der Auweraer, Photophysics and photochemistry of molecular materials, B-KULG0112A
- 36 Selvin, P. R. ; Hearst, J. E. Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A., 91, pp. 10024-10028, 1994.
- 37 K. Bouzid. Développement des outils et méthodes de conception d'empilements OLED, vers une modélisation prédictive. Micro et nanotechnologies / Microélectronique. Université de Grenoble, 2014.
- 38 M. Boroditsky, T. F. Krauss, R. Coccioli, R. Vrijen, R. Bhat et E. Yablonovitch, Light extraction from optically pumped light-emitting diode by thin-slab photonic crystals, Applied Physics Letters 75, p. 1036, 1999.
- 39 H. Y. Ryu, Y. H. Lee, R. L. Sellin et D. Bimberg, Over 30-fold enhancement of light extraction from free-standing photonic crystal slabs with InGaAs quantum dots at low temperature, Applied Physics Letters 79, p. 3573, 2001.
- 40 A. A. Erchak, D. J. Ripin, S. Fan, P. Rakich, J. D. Joannopoulos, E. P. Ippen, G. S. Petrich et L. A. Kolodziejski, Enhanced coupling to vertical radiation using two-dimensional photonic crystal in a semiconductor light-emitting diode, Applied Physics Letters 78, p. 563, 2001.
- 41 T. H. Förster, "Zwischenmolekulare energiewanderung und fluoreszenz", Ann. Phys., vol. 6, pp. 55-75, 1948.
- 42 D. L. Dexter, "A theory of sensitized luminescence in solids", Chem. Phys., vol. 21, n° 5, pp. 836-850, 1953.
- 43 J. Quinet, "Théorie et pratique des circuits de l'électronique et des amplificateurs, Tome III : Propagation de courant H.F. le long des lignes. Abaque de Smith – Antennes. Equations de Maxwell et applications", Dunod, 1963.
- 44 P. F. Combes, « Micro-ondes. 1. Lignes, guides et cavités, chap 2. Cours et exercices », Dunod, 1996.
- 45 F. de Dieuleveult et O. Romain, Électronique appliquée aux hautes fréquences principes et applications. Chap 10, Dunod, 2008.
- 46 W. A. Davis et K. K. Agarwal, Radio frequency circuit design, chap .4. New York: John Wiley, 2001.
- 47 S. A. Mass, The RF and microwave circuit design cookbook, Artech House, 1998.

- 48 I. Hickman, Practical RF Handbook. chap. 2, Newnes, 2006.
- 49 C. P. Wen, Coplanar waveguide: A surface strip transmission line suitable for nonreciprocal gyromagnetic device applications, IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques, vol. 17, no. 12, pp. 1087–1090, 1969.

## 2. MODÈLE ÉLECTRIQUE D'UNE OLED EN RÉGIME D'EXCITATION ELECTRIQUE PAR IMPULSIONS

### SOMMAIRE

---

INTRODUCTION .....	43
2.1. MODELISATION ELECTRIQUE .....	43
2.1.1. Modèle électrique équivalent en régime d'excitation tout ou rien .....	43
2.1.2. Réponse à une excitation électrique quelconque .....	45
2.1.3. Réponse à un échelon de tension .....	46
2.1.4. Réponse à une impulsion rectangulaire .....	47
2.1.4.1. <i>Analyse temporelle</i> .....	47
2.1.4.2. <i>Aspect fréquentiel</i> .....	47
2.1.4.3. <i>Synthèse</i> .....	48
2.1.5. Problématique de la capacité .....	49
2.1.6. Problématique de la résistance série .....	50
2.1.6.1. <i>Disposition classique des électrodes</i> .....	50
2.1.6.2. <i>Autre stratégie de réduction de résistance série : l'anode en « anse de panier »</i> .....	50
2.1.6.3. <i>Métallisation</i> .....	51
2.1.7. Problématique de la résistance dynamique .....	51
2.1.8. Simulations numériques sur le modèle électrique .....	51
2.1.8.1. <i>Présentation de différents scénarii</i> .....	51
2.1.8.2. <i>Calcul numérique de la constante de temps de <math>\mu</math>-OLED</i> .....	52
2.1.8.3. <i>Calcul numérique de la densité de courant utile</i> .....	52
2.1.8.4. <i>Influence de la forme de la tension d'excitation</i> .....	54
2.2. PROBLEMATIQUE DE HAUTE FREQUENCE : MODELISATION RF .....	55
2.2.1. Réflexion sur une ligne .....	55
2.2.2. Structuration des électrodes .....	56
2.2.2.1. <i>Contrainte sur l'impédance caractéristique</i> .....	57
2.2.2.2. <i>Contrainte sur la constante diélectrique effective</i> .....	58
2.2.3. Simulation avec ADS .....	58
2.2.4. Réalisation d'éléments passifs sur lignes CPW .....	59
CONCLUSION .....	61
REFERENCES .....	62

---



## INTRODUCTION

Dans ce chapitre, nous présentons le modèle électrique d'une OLED ainsi que les paramètres clefs susceptibles d'influencer son temps de réponse. Leur analyse devra nous amener vers les indications nécessaires à la réalisation d'OLED rapide qui soit en mesure de répondre efficacement à des impulsions électriques dont la durée est inférieure à la dizaine de nanosecondes. Et pour rendre l'excitation et les mesures compatibles avec les hautes fréquences impliquées dans de telles impulsions, un dimensionnement particulier va être mis en œuvre pour la circuiterie du composant.

### 2.1. MODELISATION ELECTRIQUE

Dans cette première section, nous présentons le modèle électrique d'une OLED, en vue de comprendre et interpréter sa réponse électrique résolu en temps lorsqu'elle est soumise à une excitation par impulsion électrique.

L'empilement des couches organiques de l'OLED et la nature de ses électrodes lui imposent un comportement électrique particulier. La faible épaisseur de l'électrode transparente est responsable d'une résistance électrique importante en série avec le dispositif. En outre, les phénomènes de transport de porteurs de charges dans les couches organiques prises en sandwich entre les électrodes produisent un comportement capacitif significatif [1]. La question de la modélisation qui vise à décrire le comportement de l'OLED a fait l'objet d'importants travaux de recherche ces dernières années. Différents modèles théoriques peuvent être trouvés dans la littérature, allant des plus simples, qui modélisent uniquement le comportement global du dispositif [2, 3], aux plus complexes qui détaillent la contribution de chaque couche que comprend l'OLED [4-8]. Chacune d'elle implique des procédures particulières de caractérisation et un outillage particulier pour identifier les paramètres du modèle.

#### 2.1.1. Modèle électrique équivalent en régime d'excitation tout ou rien

L'empilement des couches organiques de l'hétérostructure d'une OLED est rappelé sur la *Figure 2.1b*. D'un point de vue électrique, une telle structure peut être considérée comme un circuit électrique combinant des résistances ohmiques et des condensateurs [12]. L'origine physique des pertes ohmiques est principalement attribuable aux résistances de contact aux interfaces électrodes / couches organiques, à la conduction dans les couches organiques, à la résistivité des électrodes. Le comportement capacitif est quant à lui dû à la nature diélectrique de la pile de couches organiques en sandwich entre deux électrodes et aux capacités de jonction induites par les barrières énergétiques entre les couches organiques adjacentes.

Le circuit équivalent le plus simple, permettant de modéliser le comportement électrique d'une OLED en régime d'impulsion est composé d'une résistance série ( $R_s$ ), d'une résistance

dynamique ( $R_d$ ) variable en parallèle avec une capacité unique ( $C$ ) conformément à la Figure 2.1c.

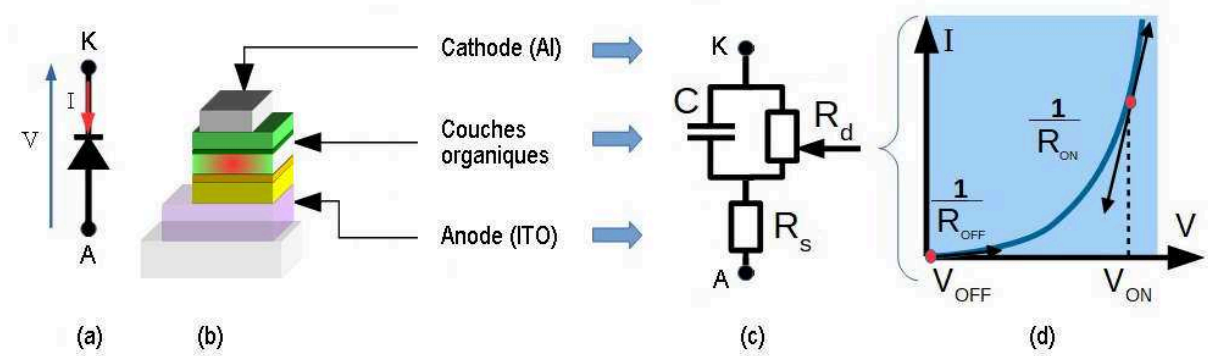


Figure 2.1 : Structure (b) et circuit équivalent (c) d'une OLED

La résistance série  $R_s$  englobe la résistance de contact et les pertes ohmiques dans les électrodes tandis que la résistance dynamique  $R_d$  modélise la pente de la caractéristique  $I(V)$  de l'OLED pour un point de fonctionnement donné, voire Figure 2.1d. En régime d'impulsion, les deux états caractéristiques ON et OFF sont associés à deux valeurs de la résistance  $R_d$  qui valent  $R_{ON}$  et  $R_{OFF}$  respectivement.  $R_{ON}$  est la résistance effective dans le circuit équivalent lorsque qu'une tension d'excitation élevée est appliquée. Plus l'amplitude d'excitation est élevée, plus la résistance  $R_{ON}$  est faible. On a alors :

$$\frac{1}{R_{ON}} = \frac{1}{R_d} \Big|_{ON} = \frac{dI}{dV} \Big|_{ON} \quad \text{Eq. 2.1}$$

Pendant l'état OFF, un raisonnement similaire s'applique, sauf que la valeur de  $R_{OFF}$  est suffisamment élevée pour qu'elle soit assimilée à un circuit ouvert. Ceci est illustré par la pente de la caractéristique I-V qui est proche de zéro.

La capacité  $C$  prend en compte la capacité de jonction  $C_j$  et la capacité  $C_g$ , dite géométrique, du condensateur plan formé par les électrodes et l'empilement de couches organiques de l'OLED. Elle peut être estimée en première approximation par :

$$C_g = \epsilon_0 \epsilon_r \frac{A}{d} \quad \text{Eq. 2.2}$$

où  $A$  et  $d$  sont respectivement la surface active de l'OLED et l'épaisseur des couches organiques ;  $\epsilon_0$  est la permittivité du vide et  $\epsilon_r$  la constante diélectrique des couches organiques.

Les matériaux organiques ayant une constante diélectrique comprise entre 3 et 4, la capacité géométrique est estimée à environ  $28 \text{ nF/cm}^2$  en moyenne pour une OLED de  $110 \text{ nm}$  d'épaisseur.



### 2.1.2. Réponse à une excitation électrique quelconque

On suppose le schéma électrique équivalent précédent placé dans un circuit d'excitation comprenant un générateur d'impulsions pour l'excitation et en série avec une résistance de charge ou de mesure ( $R_c$ ) conformément à la Figure 2.2.

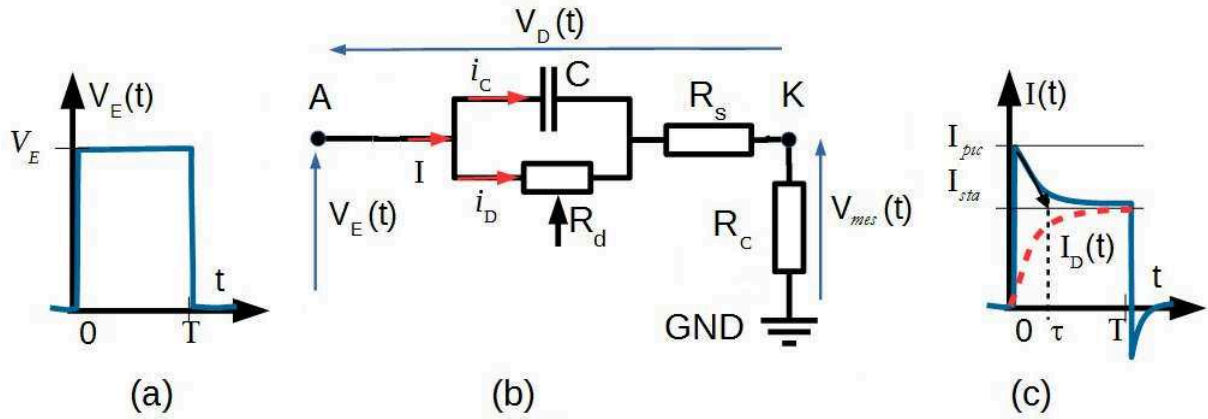


Figure 2.2 : Circuit d'excitation d'une OLED

Par ailleurs, comme on peut le voir sur la Figure 2.2b, les notations ci-après ont été adoptées :  $i$  pour le courant global de diode,  $i_c$  pour le courant dans la capacité,  $i_D$  pour le courant dans la résistance dynamique,  $v_E$  pour la tension d'excitation en sortie du générateur,  $v_D$  pour la tension aux bornes de l'OLED et  $v_{mes}$  pour la tension mesurée aux bornes de la résistance de charge.

Conformément à ces notations, le comportement électrique de l'OLED peut être exprimé conjointement par les systèmes d'équations :

$$\begin{cases} v_D = v_c + R_s i \\ i = i_D + i_c \\ i_c = C \frac{dv_c}{dt} \\ i_D = \frac{1}{R_d} v_c \end{cases} \quad \text{et} \quad \begin{cases} v_{mes} = v_E - v_D \\ v_{mes} = R_c i \end{cases}$$

Il faut noter que la tension aux bornes de la résistance de charge est directement proportionnelle au courant  $i$  de l'OLED. De ce fait, elle pourra être désignée par la suite « réponse électrique de l'OLED » au même titre que le courant.

En éliminant les autres variables, on arrive à exprimer la réponse électrique  $i$  en fonction de la tension d'excitation  $v_E$  par l'équation :

$$\frac{di(t)}{dt} + \left(1 + \frac{R_d}{R_s + R_c}\right) \frac{1}{R_d C} i(t) = \frac{1}{R_s + R_c} \left[ \frac{dv_E(t)}{dt} + \frac{1}{R_d C} v_E(t) \right] \quad \text{Eq. 2.3}$$

L'expression du courant effectif  $i_D$  passant par la résistance dynamique de l'OLED et réellement utile à l'émission lumineuse se calcule à partir de :

$$i_D = \frac{v_E(t) - (R_s + R_c)i(t)}{R_d} \quad \text{Eq. 2.4}$$

### 2.1.3. Réponse à un échelon de tension

En réponse à un échelon d'excitation d'amplitude  $V_E$ , l'expression du courant de diode est donnée par :

$$i(t) = \frac{1}{R_d + R_s + R_c} \left[ 1 + \frac{R_d}{R_s + R_c} \exp\left(-\frac{R_d + R_s + R_c}{R_s + R_c} \frac{1}{R_d C} t\right) \right] V_E \quad \text{Eq. 2.5}$$

Le courant  $i(t)$  est la somme du courant  $i_c(t)$  circulant à travers le condensateur  $C$  et du courant  $i_D(t)$  circulant à travers la résistance dynamique  $R_D$  et qui seul contribue effectivement à l'électroluminescence. Son expression est donnée par :

$$i_D(t) = \frac{1}{R_d + R_s + R_c} \left[ 1 - \exp\left(-\frac{R_d + R_s + R_c}{R_s + R_c} \frac{1}{R_d C} t\right) \right] V_E \quad \text{Eq. 2.6}$$

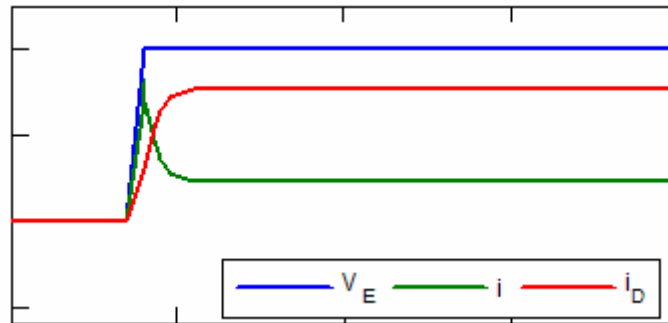


Figure 2.3 : Courbe théorique d'excitation et de réponse indicielle électrique d'une OLED

La représentation graphique de cette équation est donnée sur la *Figure 2.3*. Il en ressort que la réponse de l'OLED à un échelon d'excitation est un pic de courant au « turn-on », suivi d'une décroissance exponentielle qui tend vers un état stationnaire au bout d'un certain temps proportionnel à la constante de temps  $\tau$ . En parallèle, l'évolution du courant  $i_D(t)$  suit une croissance exponentielle avec la même constante de temps  $\tau$  et atteint un état stationnaire au bout de la même durée.

La constante de temps  $\tau$  correspond à la vitesse de charge de la capacité et s'exprime par :

$$\tau = \frac{1}{\frac{1}{R_d} + \frac{1}{R_s + R_c}} \times C \quad \text{Eq. 2.7}$$

Le temps de réponse du circuit, qu'on pourrait définir ici comme le temps nécessaire pour que le courant  $i_D(t)$  se rapproche de sa valeur finale à 5% près est donnée par :

$$t_r \approx 3\tau \quad \text{Eq. 2.8}$$

A partir de cette expression (Eq. 2.8), de celle de la constante de temps (Eq. 2.7) et de celle la capacité  $C$  (Eq. 2.2), il apparaît que le temps de réponse électrique de l'OLED est accessible par la géométrie de l'OLED et sa structure. En particulier, il est proportionnel à sa surface active. Par conséquent, pour le réduire, une des pistes consiste à réduire la surface active du composant.

Un autre moyen de réduction du temps de réponse du circuit serait de minimiser les différentes résistances du circuit à savoir  $R_s$ ,  $R_c$  et  $R_d$ .

## 2.1.4. Réponse à une impulsion rectangulaire

### 2.1.4.1. Analyse temporelle

La Figure 2.4 représente la réponse du circuit d'OLED à une impulsion rectangulaire de durée  $T$  dans deux cas extrêmes. Le premier à gauche correspond à une constante de temps relativement faible par rapport à  $T$ . On y voit que la réponse atteint le régime permanent avant l'extinction de l'excitation.

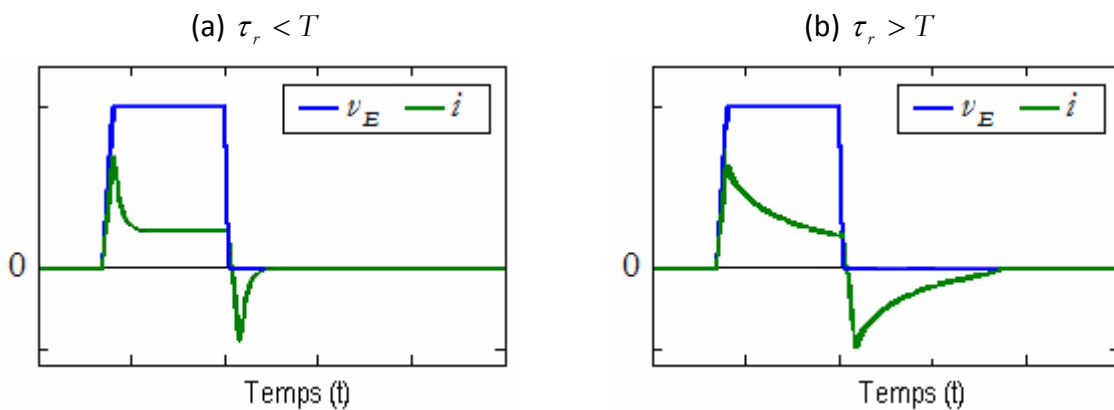


Figure 2.4 : Illustration de la réponse électrique d'une OLED à une impulsion rectangulaire (a) constante de temps suffisamment faible ; (b) constante de temps trop grande

Dans le deuxième cas (à droite), la constante de temps est plus grande, ce qui implique un temps de réponse plus que la durée de l'impulsion d'excitation. Le circuit n'a donc pas le temps d'atteindre le régime stationnaire avant la fin de l'impulsion d'excitation. On peut en conclure, qu'en régime d'excitation par impulsions, afin de permettre une réponse électrique efficace de l'OLED, il est impératif que son temps de réponse soit plus court que la durée de l'impulsion d'excitation.

### 2.1.4.2. Aspect fréquentiel

Une impulsion rectangulaire isolée  $v_E(t)$  d'amplitude  $A_E$  et de durée  $T$  et centré sur l'origine des temps a pour de spectre :

$$V_E(f) = A_E T \times \text{sinc}(Tf) \quad \text{Eq. 2.9}$$

La représentation d'un tel spectre est donnée en Figure 2.5 pour  $T = 10ns$ .

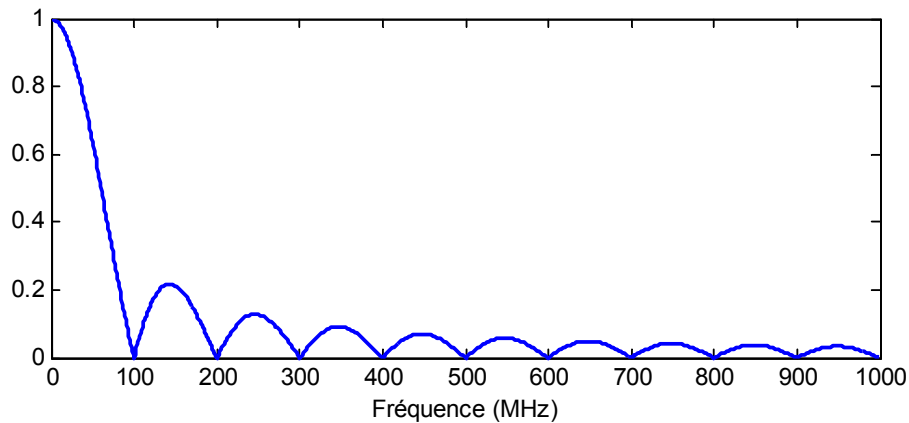


Figure 2.5 : Spectre normalisé d'une suite d'impulsion rectangulaire de largeur 10ns

La bande passante nécessaire pour passer l'essentiel de l'énergie contenue dans ce spectre est estimée dans le tableau ci-après.

	Pourcentage d'énergie transmise		
	95%	98%	99%
Bande passante	$\approx 2.1/T = 210MHz$	$\approx 5.2/T = 520MHz$	$\approx 10.3/T = 1.03GHz$

Tableau 2.1 : Estimation de la bande passante correspondant à x% de puissance totale

A partir de ces estimations, si on assimilait la coupure du circuit d'OLED à l'inverse de sa constante de temps (fréquence de coupure à  $-3dB$ ), alors la condition pour que le circuit absorbe 98% de l'énergie de l'impulsion d'excitation s'écrirait  $1/(2\pi\tau) \geq 5.2/T$ , soit finalement :

$$\tau \leq \frac{1}{2\pi} \times \frac{T}{5.2} \tag{Eq. 2.10}$$

Cette relation confirme la conclusion du paragraphe précédent sur la nécessité d'avoir un temps de réponse plus court que la durée de l'impulsion d'excitation. En plus elle précise l'ordre de grandeur du rapport  $\tau/T$ .

Pour passer efficacement (98% d'énergie) une impulsion de  $10ns$ , la constante de temps du circuit doit être inférieure à  $306.1ps$ .

### 2.1.4.3. Synthèse

Au vu de la relation Eq. 2.7 et des conclusions sur le temps de réponse (Eq. 2.10), le dimensionnement d'une OLED susceptible de répondre efficacement à une impulsion d'excitation courte peut finalement être résumée en trois lignes directrices de conception s'appuyant la réduction des paramètres clefs suivants :

- la capacité  $C$  : elle doit être minimisée autant que possible en réduisant par exemple la surface active  $A$  de l'OLED) ;

- la résistance dynamique  $R_d$  : elle peut être réduite en allant vers un point de fonctionnement haut sur la caractéristique  $I(V)$ , c'est-à-dire vers des points de tension élevée ;
- les résistances de contact : elles dépendent directement de l'alignement des niveaux d'énergie aux interfaces électrode / organique ;
- les résistances des lignes (ou pistes) d'alimentation  $R_s$  : la métallisation de l'électrode d'ITO permettrait aussi d'aller vers des valeurs plus faible.

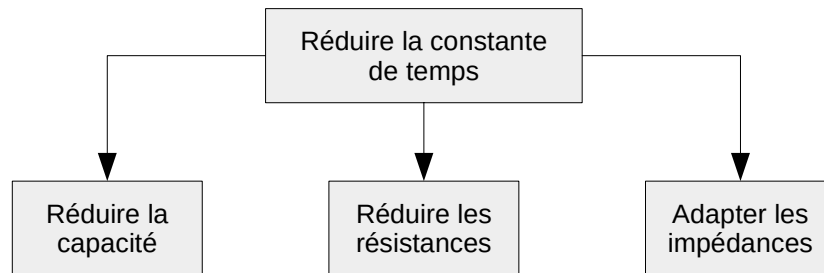


Figure 2.6 : Paramètres clés de réduction de la constante de temps de l'OLED

Pour des impulsions très courtes, il faut, en plus des contraintes sur la capacité et les résistances, prendre en compte les problématiques de hautes fréquences en terme d'adaptation d'impédance entre le composant, les lignes d'alimentation et le générateur.

### 2.1.5. Problématique de la capacité

La capacité de jonction d'une OLED est liée à sa surface active  $\mathcal{A}$  par la relation eq 2.2. Traditionnellement, la délimitation de la surface active de OLED peut être réalisée de 2 façons différentes :

- soit par photolithographie ; mais la résine isolante utilisée pour délimiter la zone active introduit une capacité parasite qui n'apporte pas de bénéfice à la réduction de la surface active [14] ;
- soit par croisement des électrodes ; le principe est illustré sur la Figure 2.7 ; l'anode d'ITO est structurée avant le dépôt des couches d'organiques sous vide, le dépôt de la cathode d'aluminium sous forme de film mince se fait après les couche organiques par l'évaporation au travers d'un masque à cache.

Dans ce deuxième cas de figure l'anode d'ITO (verticale) de longueur  $l_A$  et de largeur  $W$  croise la cathode d'aluminium (horizontale) de longueur  $l_K$  et de largeur  $L$ . La surface active ainsi délimitée, la relation Eq. 2.2 devient :

$$C_g = \varepsilon_0 \varepsilon_r \frac{W \times L}{d} \quad \text{Eq. 2.11}$$

Il en ressort que la réduction de la capacité peut être obtenue à travers la réduction des tailles des électrodes.

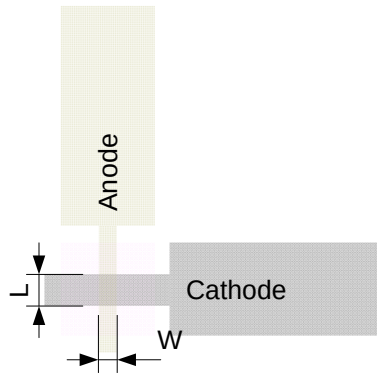


Figure 2.7 : Principe de la délimitation de la surface active d'une OLED par la section de croisement de ses deux électrodes

## 2.1.6. Problématique de la résistance série

### 2.1.6.1. Disposition classique des électrodes

Si on note  $R_{ITO/sq}$  la résistance par carré de l'ITO et  $e_K$  l'épaisseur de la cathode et  $\rho_{Al}$  sa résistivité, la résistance des pistes d'alimentation dans la configuration de la *Figure 2.7* est donnée par :

$$R_{\Omega} = \frac{l_A}{W} \times R_{ITO/sq} + \rho_{Al} \times \frac{l_K}{e_K L} \approx \frac{l_A}{W} \times R_{ITO/sq} \quad \text{Eq. 2.12}$$

Le film d'ITO ayant à la fois une certaine résistivité et une très faible épaisseur, la contribution de l'anode dans la résistance série est nécessairement importante. Essayer de réduire  $R_{\Omega}$  reviendrait à diminuer la longueur  $l_A$  de l'anode ou à augmenter sa largeur  $W$ . Malheureusement on ne peut pas réduire indéfiniment  $l_A$  car sa longueur minimale est en pratique imposée par la précision sur l'alignement de masques à cache pour le positionnement de la cathode. Ce positionnement se faisant à l'œil à mi parcours pendant le processus d'évaporation sous vide, il est difficile de réaliser des alignements avec une précision meilleure que  $500\mu m$  voire même  $1mm$ .

Par ailleurs, toute démarche visant à la réduire en augmentant  $W$  est quelque peu antagoniste à celle de réduction de la capacité présentée plus haut car cela supposerait une augmentation de la surface active de l'OLED. Toutefois, l'effet d'une telle augmentation sur le temps de réponse n'annihilerait pas totalement les bénéfices de la réduction de capacité (annihilation totale si  $R_c \ll R_s \ll R_d$ ).

### 2.1.6.2. Autre stratégie de réduction de résistance série : l'anode en « anse de panier »

Afin de réduire la résistance des pistes d'électrodes sans influencer la précision sur le positionnement de la cathode, nous avons imaginé une géométrie d'anode qui consiste à la structurer avec une zone évidée dans la partie qui se superpose avec la cathode (*Figure 2.8*).

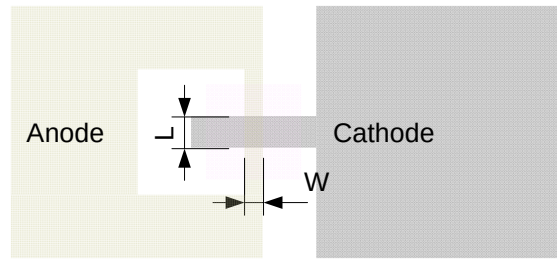


Figure 2.8 : Configuration de l'anode en anse de panier

*En prenant le contact d'anode de part et d'autre de la surface active, il est possible de réduire de moitié sa contribution dans la résistance série*

Le nom donné à cet évidement est « l'anse de panier ». Comparativement à la géométrie classique de simple croisement d'électrodes de la *Figure 2.7*, il permet idéalement, dans l'hypothèse d'un positionnement correct centré sur l'anse de panier, de réduire de moitié la résistance des pistes car les charges sont acheminées de part et d'autre de l'anse de panier.

### 2.1.6.3. Métallisation

Une autre démarche permettant de réduire de façon significative la résistance des pistes consiste à métalliser les parties de l'électrode d'ITO qui ne nécessite pas de transparence c'est à dire celles se trouvent en dehors de la surface active de l'OLED. Il s'agit par exemple de déposer par évaporation thermique sous vide une couche conductrice (aluminium, argent ou or) par-dessus la couche d'ITO, afin d'améliorer de plusieurs ordres de grandeur la conductivité des pistes et par conséquent l'injection des porteurs de charges.

### 2.1.7. Problématique de la résistance dynamique

Pour réduire la résistance dynamique il est impératif de travailler avec un point de fonctionnement suffisamment haut sur la caractéristique  $I(V)$ . Cela suppose d'exciter le composant avec des impulsions d'amplitude suffisamment élevée.

### 2.1.8. Simulations numériques sur le modèle électrique

#### 2.1.8.1. Présentation de différents scénarii

La *Figure 2.9* représente la constante de temps d'une OLED calculée selon l'expression Eq. 2.7 dans quatre cas de figure distincts.

- Dans le premier cas la résistance de charge  $R_c$  est estimée à  $50\Omega$  et la résistance série  $R_s$  est assez grande pour former avec  $R_c$  une résistance globale de  $106\Omega$  tandis que la capacité vaut  $13pF$ . Le choix de ces valeurs repose sur un précédent travail [14].
- Dans le deuxième cas, beaucoup plus réaliste, la résistance série a été minimisée par la métallisation de l'ITO et la résistance de charge est fixée à  $10\Omega$  tandis que la capacité est maintenue à  $13pF$ .

- Les troisième et quatrième cas de figure correspondent à la situation très optimiste d'une réduction drastique d'un facteur dix de la capacitance soit  $1.3\text{ pF}$ , avec pour résistance globale de  $106\Omega$  et  $16\Omega$  respectivement.

### 2.1.8.2. Calcul numérique de la constante de temps de $\mu$ -OLED

Sur la Figure 2.9a, la constante de temps électrique sature à  $1.36\text{ ns}$  dans le premier scénario (rouge avec cercles) alors qu'elle est saturée à  $206\text{ ps}$  dans le cas  $R_s = 16\Omega$  (lignes noires avec des carrés). Dans les troisième et quatrième scénarios, la constante de temps électrique sature respectivement à  $142\text{ ps}$  et  $22\text{ ps}$ .

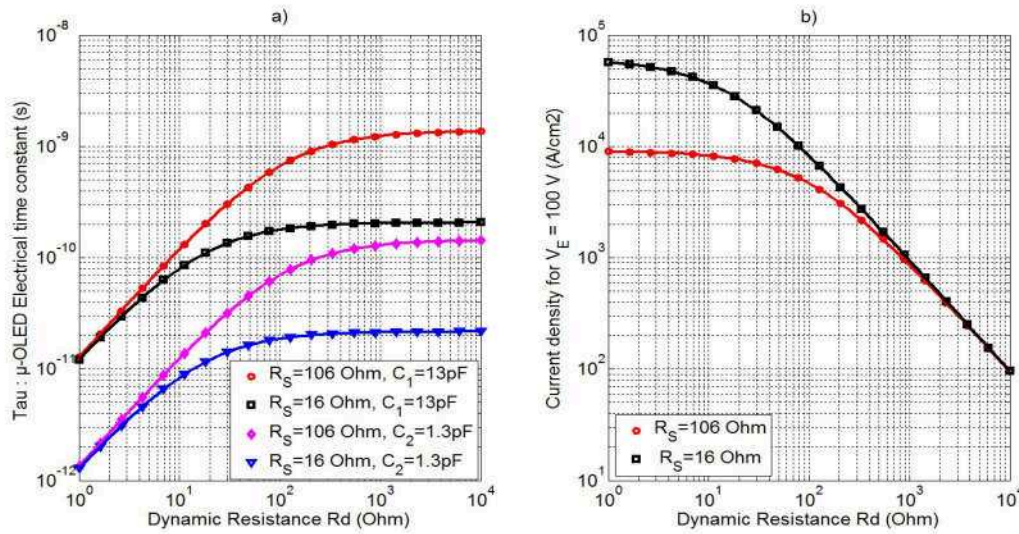


Figure 2.9 : Constante de temps de l'OLED (a) et densité de courant pour une excitation pulsée d'amplitude  $100\text{ V}$  et pour une surface active de  $90\mu\text{m} \times 120\mu\text{m}$  (b)

Dans tous les cas, la diminution de  $R_d$  en deçà de la résistance série totale du circuit  $R_s + R_c$  réduira davantage la constante de temps. Avec ces faibles valeurs des constantes de temps électriques, cette analyse chiffrée fournit des indications préliminaires sur la possibilité de concevoir des dispositifs organiques optoélectroniques plus rapides que ce qui a été rapporté jusqu'à présent dans la littérature. De plus, ces faibles valeurs des constantes de temps électriques étant disponibles pour de larges plages de variation de la résistance dynamique, un niveau d'excitation élevé n'est pas indispensable pour obtenir une réponse rapide de tels composants optoélectroniques organiques.

### 2.1.8.3. Calcul numérique de la densité de courant utile

La Figure 2.3b illustre l'évolution temporelle de la densité de courant  $i$  qui démarre avec un pic de valeur  $I_{pic}$  pour charger la capacité.

$$I_{pic} = \frac{V_E}{R_s + R_c} \quad \text{Eq. 2.13}$$



Ce pic est suivi d'une décroissance exponentielle pour rejoindre la valeur du courant stationnaire  $I_{std}$  obtenue lorsque la capacité est chargée. Ce courant vaut alors :

$$I_{std} = \frac{R_s + R_c}{R_d + R_s + R_c} I_{pic} \quad \text{Eq. 2.14}$$

L'expression Eq. 2.13 montre qu'à tension  $V_E$  constante fixe, il est possible d'augmenter le courant crête en réduisant  $R_c$  ou  $R_s$ . La relation Eq. 2.16 quant à elle indique que l'écart entre le courant stationnaire et le courant de crête diminue avec  $R_d$  et peut même devenir négligeable si  $R_d \ll R_s + R_c$ .

Sur la *Figure 2.9b* la densité de courant stationnaire  $J_{std} = I_{std} / A$  est évaluée en fonction de  $R_d$ . Elle est maximale avec des faibles valeurs de  $R_d$  et limitée par la résistance série globale ( $R_{sT} = R_s + R_c$ ) à  $10 \text{ kA/cm}^2$  dans le premier scénario et à environ  $50 \text{ kA/cm}^2$  dans le second. Il est donc possible d'obtenir des densités de courants très importantes dans la plage de courant visée.

Dans des conditions plus réalistes avec  $R_{sT} = 106\Omega$  et  $R_d = 300\Omega$ , le courant maximum est limité  $2.1 \text{ kA/cm}^2$ . Cette valeur reste cependant compatible avec les objectifs que nous nous sommes fixés. Pour minimiser  $106\Omega$ , le point de fonctionnement D (*Figure 2.1*) doit être déplacé vers le haut le long de la courbe I-V en augmentant  $V_{ON}$ , alors que pour réduire  $R_{sT}$  le dispositif doit être modifié physiquement;  $R_s$  peut être minimisée via la métallisation de la partie de l'ITO, et un dépôt d'aluminium plus épais et avec une piste électrique plus courte tandis que  $R_c$  peut simplement être réglée sur la valeur de résistance minimale qui permet encore une mesure de la tension en tenant compte de la sensibilité de l'équipement de mesure.

Il faut noter cependant que le courant de crête à la mise en route est inversement proportionnel à la valeur de la résistance série totale et va tendre effectivement vers l'infini si  $R_{sT}$  venait à être nulle. En pratique, cela signifierait une destruction de l'OLED lorsque la tension d'excitation est importante. Ceci peut aussi être interprété comme le moyen d'atteindre une même densité de courant avec des tensions d'excitation plus faibles.

En outre, la valeur du courant stationnaire tend vers le courant de crête si  $R_d \ll R_{sT}$  comme illustré sur la *Figure 2.4b*. Cette condition conduit probablement à une maximisation du courant stationnaire et une atténuation bénéfique des effets transitoires.

Cette analyse sur le temps de réponse de l'OLED peut finalement être résumée en trois lignes directrices de conception si on veut améliorer le temps de réponse :

- réduction de la zone active OLED ;
- minimisation des résistances série ;

- fonctionnement avec des impulsions d'amplitude suffisamment élevées pour obtenir une résistance dynamique faible.

#### 2.1.8.4. Influence de la forme de la tension d'excitation

L'équation différentielle Eq. 2.3 est résolue numériquement à l'aide de la transformation de LAPLACE en utilisant différentes fonctions d'excitation, différentes valeurs de la capacité  $C$  et différentes valeurs de la résistance dynamique  $R_d$ . Le courant  $i_D(t)$  circulant à travers la partie active de l'OLED, c'est-à-dire  $R_d$  dans le modèle, en est déduit. Les résultats sont présentés en Figure 2.10a et Figure 2.10b dans le cas d'une excitation par une fonction porte de durée de 10ns et en Figure 2.10c et Figure 2.10d dans le cas d'un sigmoïde.

Dans le cas de la fonction porte, le début et la fin de la réponse impulsionnelle présentent des dépassements indiquant la charge et la décharge de la capacité. Ces dépassements deviennent moins prononcés lorsque la capacité  $C$  diminue de  $13\text{pF}$  à  $1.3\text{pF}$  en conséquence de la diminution de la constante de temps. Dans le cas d'une fonction d'excitation sigmoïde (Figure 2.10c et d), le dépassement est moins visible sauf pour la plus grande valeur de la constante de temps ( $R_d = 300\Omega$ ,  $C = 13\text{pF}$ ).

Cette simulation permet d'observer au passage que l'absence de dépassement n'est pas forcément la traduction de réponse lente et que quelle que soit la fonction d'excitation, le courant  $i_D(t)$  atteint son maximum avant la fin de la durée d'impulsion. Une première conclusion est que la fonction d'excitation a un impact important sur la décharge et donc qu'il convient de considérer avec attention l'estimation de la constante de temps OLED à partir de la mesure de la décharge capacitive.

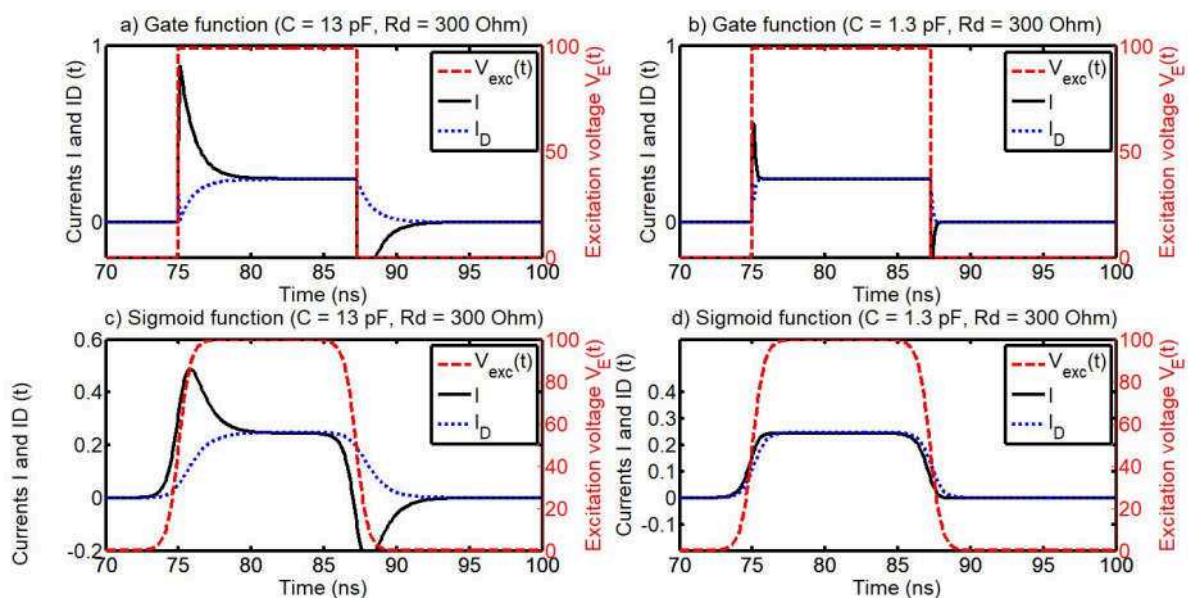


Figure 2.10 : Réponse électrique de l'OLED à une impulsion rectangulaire (a, b) et à une sigmoïde (c, d)

De plus, pour les courtes constantes de temps de  $0.21\text{ns}$  ( $R_d = 20\Omega$  et  $C = 13\text{pF}$ ) et  $2.1\text{ns}$  ( $R_d = 200\Omega$  et  $C = 13\text{pF}$ ), le courant  $i_D(t)$  atteint son état stationnaire plus rapidement

avec la fonction porte qu'avec la sigmoïde. Pour cette raison, il est important de préserver l'intégrité du signal d'excitation. Ceci peut être fait entre autres en minimisant la réflexion parasite résultant de l'inadéquation d'impédance ; ce qui conforte la nécessité d'améliorer l'adaptation d'impédance entre les électrodes de l'OLED et la connectique en provenance du générateur d'impulsions avec des électrodes de guides d'onde coplanaires.

## 2.2. PROBLEMATIQUE DE HAUTE FREQUENCE : MODELISATION RF

La réalisation d'OLED pour un fonctionnement optimal en régime d'impulsions ultracourtes soulève les problématiques spécifiques aux hautes fréquences notamment :

- en termes de bande passante ; cet aspect a été implicitement abordé en adressant la problématique de constante de temps dans les paragraphes précédents ;
- en termes d'adaptation d'impédance, afin de garantir que les impulsions électriques d'excitation atteignent sans réflexion la zone d'émission au sein de l'OLED.

Le problème d'adaptation se pose et se résout à deux niveaux. En effet, il faut :

- que d'une part, le générateur puisse transmettre à la ligne d'alimentation le maximum de puissance (toute la puissance disponible) ; on parle d'adaptation à la source ;
- que d'autre part le récepteur reçoive de la ligne le plus possible de cette puissance ; on parle alors d'adaptation à la charge.

De manière générale les générateurs ont une impédance de  $50\Omega$  et s'adapte facilement avec des câbles  $50\Omega$  disponibles sur le marché. Le problème d'adaptation se restreint alors éventuellement à l'interface entre deux tronçons de lignes et à la charge.

### 2.2.1. Réflexion sur une ligne

Comme nous l'avons vu au chapitre 1, lorsqu'une impulsion de tension de quelques nanoseconde est envoyée vers l'OLED, une partie de l'onde peut être réfléchi vers le générateur s'il y a une discontinuité d'impédance en un point quelconque de son parcours. Le taux de réflexion est donné par :

$$\Gamma = \frac{Z - Z_C}{Z + Z_C} \quad \text{Eq. 2.15}$$

où  $Z$  représente l'impédance équivalente au point de discontinuité et  $Z_C$  l'impédance caractéristique de la ligne d'alimentation.

L'un des effets de la réflexion est la réduction de la part de l'énergie incidente de l'impulsion effectivement dirigée vers l'OLED. Elle peut aussi conduire à un élargissement des impulsions, et à une limitation du temps de réponse de l'OLED. Comparativement à la fabrication des OLED à l'état de l'art, minimiser les possibilités de réflexion nécessite une

adaptation voire une modification de la géométrie de ses électrodes et du circuit d'excitation pour obtenir des garanties tant du point de vue de la continuité d'impédance dans les lignes d'alimentation que du point de vue de l'adaptation d'impédance au niveau de l'OLED.

### 2.2.2. Structuration des électrodes

Si l'on considère les électrodes comme le prolongement de la ligne d'alimentation vers le composant à alimenter, il est impératif de garantir la continuité d'impédance (caractéristique) lorsqu'une impulsion d'excitation passe du tronçon de ligne d'alimentation coaxiale (de  $50\Omega$ ) vers les électrodes sur substrat de verre.

Une des configurations d'électrodes compatibles avec les hautes fréquences et réalisables sur substrat de verre recouvert d'une couche conductrice et transparente, que nous avons par ailleurs identifiée dans le chapitre 1, est la ligne coplanaire (en anglais, *Coplanar Waveguide – CPW*) décrite pour la première fois par C. P. Wen [15]. Elle est constituée d'un ruban conducteur central placé à équidistance entre deux plans de masses, toutes disposées dans le même plan au dessus d'un support diélectrique.

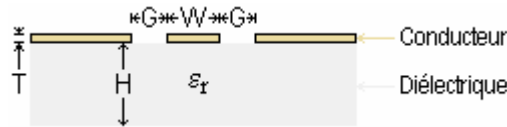


Figure 2.11 : Illustration d'une ligne coplanaire

La Figure 2.11 illustre la vue en coupe verticale d'une telle ligne.  $H$  et  $\epsilon_r$  représentent respectivement l'épaisseur et la permittivité diélectrique relative du diélectrique (substrat de verre).  $W$  et  $T$  représente respectivement la largeur et l'épaisseur de la bande centrale.  $G$  est la largeur du gap de part et d'autre entre la bande centrale et les plans de masse.

La constante diélectrique effective  $\epsilon_{eff}$  d'une telle ligne et son impédance caractéristique  $Z_C$  sont fixées essentiellement par  $W$  et  $G$  à travers le facteur de forme  $k_0$  et la quantité  $k_1$  définis respectivement par :

$$k_0 = \frac{W}{W + 2G} \quad \text{Eq. 2.16}$$

$$k_1 = \frac{\sinh\left(\frac{\pi W}{4H}\right)}{\sinh\left[\frac{\pi(W + 2G)}{4H}\right]} \quad \text{Eq. 2.17}$$

On a alors : [16, 17]

$$\epsilon_{eff} = 1 + \frac{1}{2} \times \frac{K(k'_0)}{K(k_0)} \times \frac{K(k_1)}{K(k'_1)} \times (\epsilon_r - 1), \text{ avec } k'_i = \sqrt{1 - k_i^2} \quad \text{Eq. 2.18}$$

$$Z_C = \frac{30\pi}{\sqrt{\epsilon_{eff}}} \times \frac{K(k_0')}{K(k_0)} \quad \text{Eq. 2.19}$$

$K(k)$  est l'intégrale elliptique complète de première espèce de module  $k$  définie par : [18]

$$K(k) = \int_0^{\pi/2} \frac{d\varphi}{\sqrt{1 - k^2 \sin^2(\varphi)}} \quad \text{Eq. 2.20}$$

On montre que [18, 19]

$$\frac{K(k)}{K(k')} = \begin{cases} \pi / \ln \left( 2 \times \frac{1 + \sqrt{k'}}{1 - \sqrt{k'}} \right), & \text{si } 0 \leq k \leq \frac{\sqrt{2}}{2} \\ \ln \left( 2 \times \frac{1 + \sqrt{k}}{1 - \sqrt{k}} \right) / \pi, & \text{si } \frac{\sqrt{2}}{2} \leq k \leq 1 \end{cases} \quad \text{Eq. 2.21}$$

### 2.2.2.1. Contrainte sur l'impédance caractéristique

La condition pour obtenir la même impédance caractéristique pour les électrodes que pour le générateur d'impulsions et les câbles d'alimentation se traduit par  $Z_C = 50\Omega$ . A cette condition, les courbes ci-après représentent les variations des paramètres  $G$  et  $\epsilon_{eff}$  en fonction de  $W$ , pour la géométrie CPW sur substrats de verres de permittivité relative 7.75 et d'épaisseurs  $0.7\text{mm}$  et  $1.1\text{mm}$ .

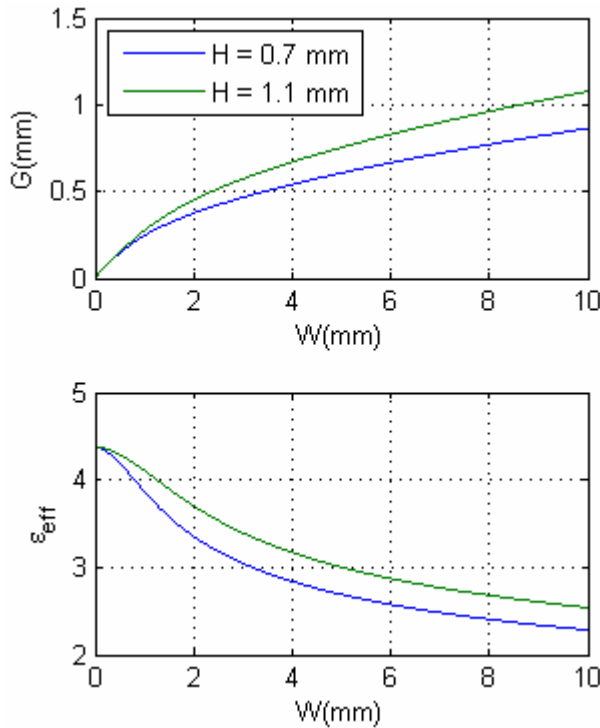


Figure 2.12 : Variations de  $G$  et  $\epsilon_{eff}$  en fonction de  $W$  pour  $Z_C = 50\Omega$

L'une des contraintes du banc d'expérimentation limite la quantité  $W + 2G$  à  $4\text{mm}$ . Le tableau ci-après, qui tient compte de cette limite, donnent quelques valeurs réalisables du couple  $(W, G)$  ainsi que la constante diélectrique effective  $\epsilon_{eff}$  pour chacun cas.

$H$ ( $\mu\text{m}$ )	$W$ ( $\mu\text{m}$ )	$G$ ( $\mu\text{m}$ )	$\epsilon_{eff}$
700	500	140.8	4.200
	<b>1000</b>	<b>243.2</b>	3.895
	<b>1500</b>	<b>316.2</b>	3.587
	2000	373.4	3.362
	2500	421.7	3.188
1100	500	146.7	4.297
	<b>1000</b>	<b>271.2</b>	4.114
	<b>1500</b>	<b>369.9</b>	3.905
	2000	448.9	3.710
	2500	514.7	3.542

Tableau 2.1 : Quelques solutions de réalisation

La valeur de la constante diélectrique effective intervient dans le calcul des éléments passifs de type inductance et capacité.

### 2.2.2.2. Contrainte sur la constante diélectrique effective

La condition sur la constante diélectrique effective consisterait, au mieux, à viser la même valeur que celle des câbles d'alimentation, c'est-à-dire réaliser  $\epsilon_{eff} = 1.5$ . Cette exigence est difficile à satisfaire compte tenu des contraintes du banc d'expérimentation. En effet, il faudrait dans ce cas, pour garantir simultanément la condition  $Z_C = 50\Omega$ , que  $W$  soit largement au dessus de  $10\text{mm}$  comme on peut en voir la tendance sur la *Figure 2.12*.

### 2.2.3. Simulation avec ADS

Le circuit de la *Figure 2.13* a été réalisé sous ADS avec les paramètres de ligne calculés précédemment pour le substrat de  $700\mu\text{m}$ . Deux cas sont simulés (ligne gravée dans l'ITO et ligne gravée dans l'ITO avec une surcouche d'or) pour quelques valeurs choisies du paramètre  $W$ .

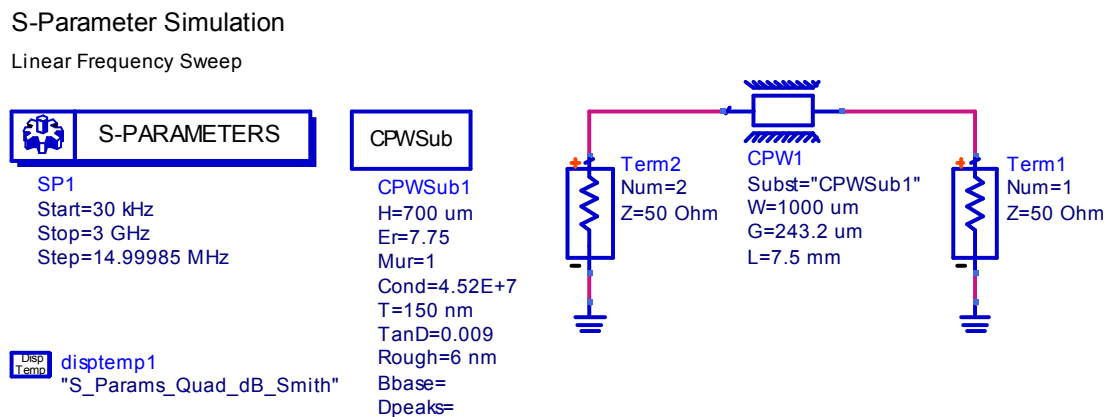


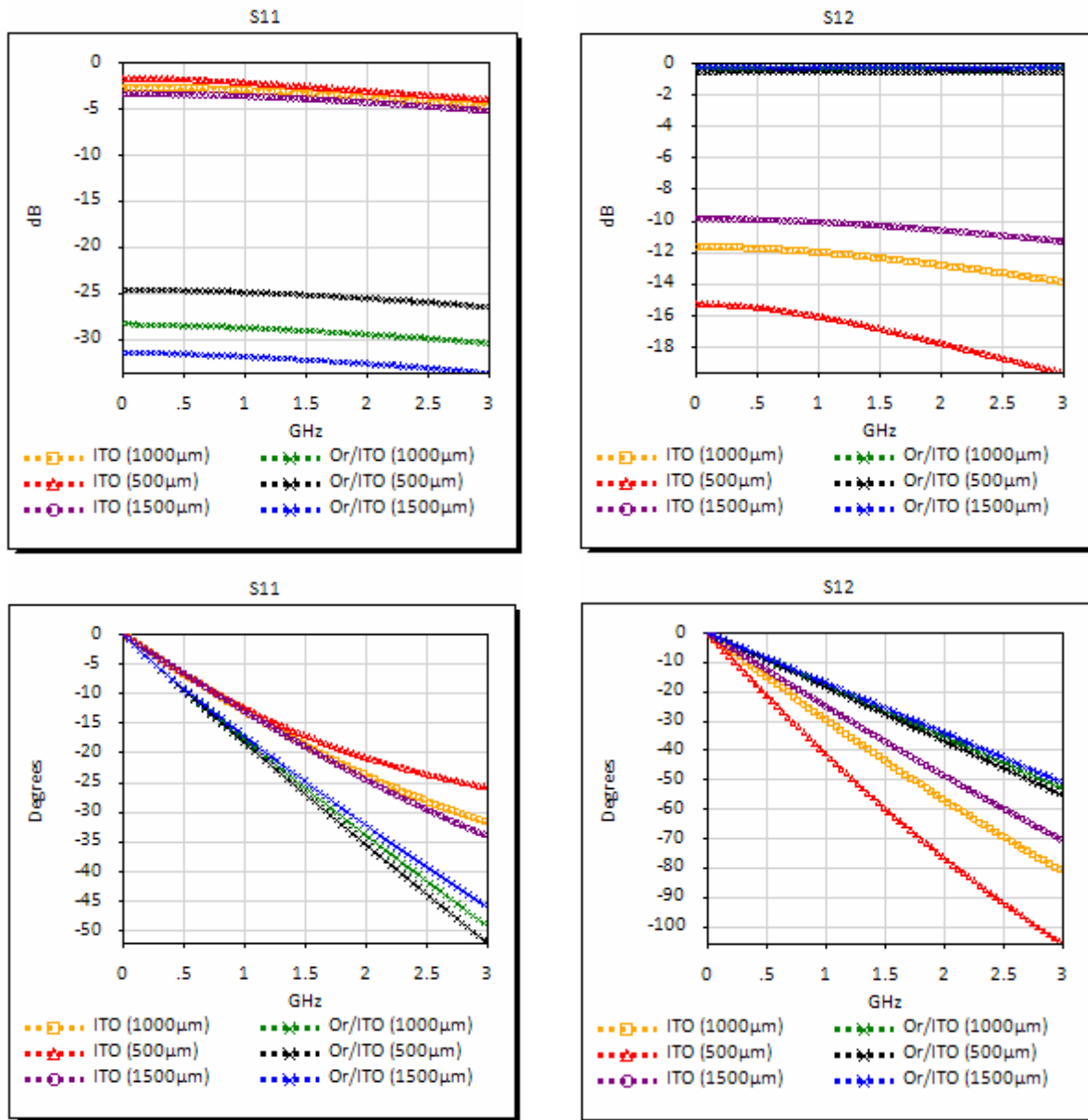
Figure 2.13 : Circuit de simulation de paramètre S d'une ligne CPW

Sur la *Figure 2.14* sont représentées les courbes de simulation de paramètres  $S_{11}$  ou coefficient de réflexion (a) et  $S_{12}$  ou facteur de transmission (b) de la ligne CPW sur ITO non métallisé et sur ITO métallisé pour trois largeurs différentes du ruban central ( $500\mu\text{m}$ ,  $1000\mu\text{m}$  et  $1500\mu\text{m}$ ).

Pour les lignes métallisées (traces verte, bleue et noire), le module du paramètre de réflexion  $S_{11}$  est assez faible ( $|S_{11}| \leq -25\text{dB}$ ), ce qui traduit une bonne réalisation de l'impédance caractéristique visée de  $50\Omega$  sur toute la plage des fréquences de simulation, avec la meilleur performance pour la ligne la plus large (trace bleu). Le paramètre de transmission ou de pertes  $S_{12}$ , prédit également de bonnes performances avec des pertes inférieures à  $1\text{dB}$ . Une fois de plus, la meilleure performance est pour la ligne la plus large.

A l'opposé, les traces orange, rouge et violette, correspondant aux lignes non métallisées, montrent des performances beaucoup moins bonnes, tant sur le plan des pertes ( $|S_{12}| < -10\text{dB}$ ) que sur la possibilité de réaliser l'impédance caractéristique de  $50\Omega$

( $-5\text{dB} \leq |S_{11}| < 0\text{dB}$ ). Ceci peut être justifié par les propriétés conductrices moins bonnes dans le cas des lignes non métallisées.



(a)

(b)

Figure 2.14 : Simulation paramètre S11 de lignes CPW

#### 2.2.4. Réalisation d'éléments passifs sur lignes CPW

Il est courant d'intégrer des composants passifs (résistance, inductance et capacité) sur les lignes CPW, notamment pour des besoins d'adaptation d'impédance. Dans la plus part des cas, leurs réalisations s'appuient sur des discontinuités d'impédance sur la dite ligne [17, 20-26]. Les géométries les plus usuelles et leurs équivalences sont données sur la Figure 2.15 :

- un stub série CPW en circuit ouvert, voir la *Figure 2.15b*, réalisé sur le conducteur central d'une ligne CPW peut être modélisé, en première approximation, comme une capacité série ;
- un stub série CPW en court circuit, voir la *Figure 2.15c*, peut être assimilé, en première approximation, à une inductance série ;
- des fentes gravées dans le plan de masse du CPW, comme sur la *Figure 2.15e*, se comportent en première approximation comme une inductance série ;
- une réduction (saut) de largeur du conducteur central peut être modélisé comme une capacité « shunt » ;
- une rupture (ou gap) sur le conducteur central peut être modélisée sous la forme d'un réseau en  $\pi$  de trois capacités dont les valeurs sont toutes fonction du gap ;
- ...

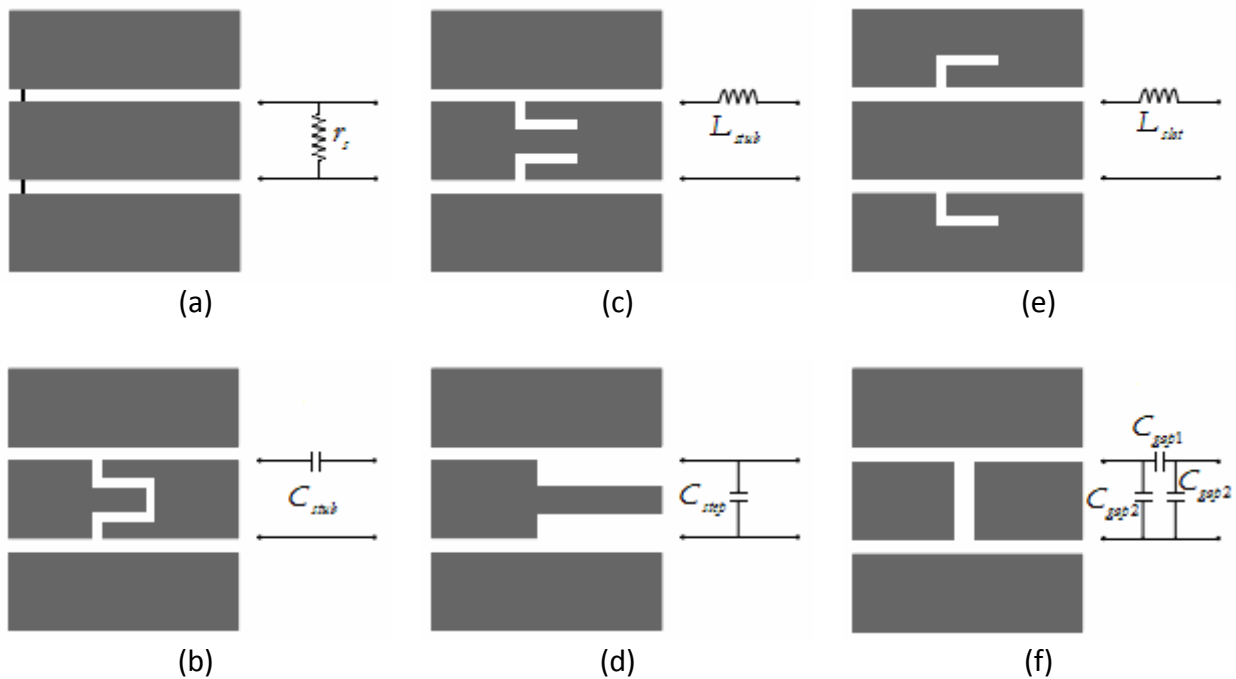


Figure 2.15 : Discontinuités sur lignes CPW

(a) Résistance ; (b) stub en circuit ouvert équivalent à une capacité ; (c) stub en court-circuit équivalent à une inductance ; (d) interruption de ligne (gap) équivalent à une capacité ; (e) défaut dans le plan de masse équivalent à une Inductance.

La résistance peut être réalisée en reliant le ruban central de part et d'autres aux deux plans de masse par deux fines pistes de film de conducteur gravées dans l'espace du gap. La valeur de résistance ainsi réalisée est exprimée par la relation :

$$r_s = \frac{G}{2l} \times R_{ITO/sq} \quad \text{Eq. 2.22}$$



$G$  est la largeur du gap entre conducteur central et les plans de masse,  $l$  la largeur de la piste de résistance et  $R_{ITO/sq}$  la résistance par carré de la couche conductrice et transparente. Ainsi, pour intégrer une résistance  $R_c$  de  $50\Omega$  dans une couche d'ITO de résistance par carré  $15\Omega$ , la largeur des pistes sera  $36\mu m$  contre  $182\mu m$  pour une résistance de  $10\Omega$ .

Pour les autres types de composants, il n'existe pas d'expressions analytiques simples pour les décrire complètement ; en lieu et place, des abaques existent dans la littérature, notamment [17]. Une judicieuse combinaison de ces briques de base, peut permettre de réaliser différentes typologies de dispositifs d'adaptation par réseaux d'impédances [24, 25].

### CONCLUSION

Nous avons établi un modèle électrique pour une d'une diode électroluminescente organique excitée en régime d'impulsion tout-ou-rien, ce qui nous a permis d'identifier et de présenter les paramètres clefs permettant d'accéder à son temps de réponse. Nous avons également établi une expression analytique du courant utile pour l'émission lumineuse dont l'évolution temporelle peut ainsi être simulée pour différente forme de signaux d'excitation. Les objectifs en terme de densités de courant sont atteignables pour certaines valeurs des paramètres clefs qui ont été quantifiés.

En terme de constante de temps, les paramètres clefs permettant de la réduire sont la capacité de l'OLED, sa résistance dynamique, les résistances d'accès et de charge.

Nous avons calculé les dimensions de lignes dans le but de structurer des électrodes sous formes de lignes coplanaires d'impédance caractéristique  $50\Omega$  afin de garantir la continuité d'impédance avec les câbles d'alimentation et permettre au circuit d'absorber efficacement les impulsions d'excitation sans réflexion vers la source.

Nous avons également présenté les composants de base dont les combinaisons permettraient de réaliser ou d'intégrer sur de telles lignes des dispositifs d'adaptation d'impédance. Nous avons enfin calculé les dimensions géométriques de résistance de charge à intégrer dans les électrodes. Sur la base de tous ces éléments nous pouvons envisager la fabrication de dispositif.

## REFERENCES

---

1. Modeling and Characterization of Organic Light-Emitting Diodes Including Capacitance Effect, IEEE Transactions on Electron Devices, vol. 62, n° 10, pp. 3314–3321, 2015.
2. C. Pinot et al., “Electrical modeling and numerical simulation of doped multilayer organic light-emitting diodes (OLEDs),” in SID Symp. Dig. Tech. Papers, vol. 38, n° 1, pp. 792–795, may 2007.
3. R. L. Lin, J.-Y. Tsai, D. Buso, and G. Zissis, “OLED equivalent circuit model with temperature coefficient and intrinsic capacitor,” in Proc. IEEE Ind. Appl. Soc. Annu. Meeting, pp. 1–8, 2014.
4. J. P. Bender, “SPICE modeling of ACTFEL devices and OLEDs,” M.S. thesis, Dept. Electr. Comput. Eng., Oregon State Univ., Corvallis, OR, USA, 2000.
5. J. H. Ahn et al., “Equivalent-circuit analysis of organic lightemitting diodes by using the frequency-dependent response of an ITO/Alq3/Al device,” J. Korean Phys. Soc., vol. 46, n° 2, pp. 546–550, 2005.
6. J. Drechsel, M. Pfeiffer, X. Zhou, A. Nollau, and K. Leo, “Organic Mip-diodes by p-doping of amorphous wide-gap semiconductors: CV and impedance spectroscopy,” Synth. Met., vol. 127, n° 1–3, pp. 201–205, 2002.
7. S. Nowy, W. Ren, A. Elschner, W. Lövenich, and W. Brütting, “Impedance spectroscopy as a probe for the degradation of organic lightemitting diodes,” J. Appl. Phys., vol. 107, n° 5, pp. 054501-1–054501-9, 2010.
8. H. Park, H. Kim, S. K. Dhungel, J. Yi, S. Y. Sohn, and D. G. Jung, “Impedance spectroscopy analysis of organic light-emitting diodes fabricated on plasma-treated indium-tin-oxide surfaces,” J. Korean Phys. Soc., vol. 51, n° 3, pp. 1011–1015, 2007.
9. S. H. Kim et al., Impedance spectroscopy of single- and double-layer polymer light-emitting diode, Journal of Applied Physics, vol. 87, n° 2, pp. 882–888, Jan. 2000.
10. S. Sohn et al., Characteristics of organic light emitting diodes with tetrakis (ethylmethylamino) hafnium treated indium tin oxide, Japanese journal of applied physics, vol. 46, n° 5L, p. L461, 2007.
11. M. Bouzitoun, C. Dridi, R. B. Chaabane, H. B. Ouada, H. Gam, and M. Majdoub, Electrical properties of ITO/benzylated cyclodextrins (?-CDs (Bz))/Al diode structures, Science and Technology of Advanced Materials, vol. 7, n° 8, pp. 772–779, Jan. 2006.
12. D. Buso, S. Bhosle, Y. Liu, M. Ternisien, C. Renaud, et Y. Chen, OLED electrical equivalent device for driver topology design, IEEE Transactions on Industry Applications, vol. 50, n° 2, p. 1459–1468, 2014.
13. Joon-ho Ahn, Dong-Hoe Chung and Joon-Ung Lee, Equivalent-Circuit Analysis of Organic Light-Emitting Diodes by Using the Frequency-Dependent Response of an ITO/Alq3/Al Device, in Journal of the Korean physical society; vol. 46, n° 2, pp. 546–550, Feb. 2005.
14. L. Zeng et al., « Electrical and Optical Impulse Response of High-Speed Micro-OLEDs Under UltraShort Pulse Excitation », IEEE Transactions on Electron Devices, vol. 64, n° 7, p. 2942-2948, 2017.
15. C. P. Wen, Coplanar waveguide: A surface strip transmission line suitable for nonreciprocal gyromagnetic device applications, IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques, vol. 17, n° 12, pp. 1087–1090, 1969.
16. G. Ghione and C. Naldi, Analytical formulas for coplanar lines in hybrid and monolithic MICs, Electronics Letters, vol. 20, n° 4, pp. 179–181, 1984.
17. R. Simons, Coplanar waveguide circuits, components, and systems. New York : John Wiley, 2001.
18. W. Hilberg, From approximations to exact relations for characteristic impedances, IEEE Transactions on Microwave Theory and techniques, vol. 17, n° 5, pp. 259–265, 1969.
19. S. S. Bedair and I. Wolff, Fast, accurate and simple approximate analytic formulas for calculating the parameters of supported coplanar waveguides for (M) MIC's, IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques, vol. 40, n° 1, pp. 41–48, 1992.
20. B. C. Wadell, Transmission line design handbook, Artech House, 1991.

21. E. Pancera, Strategies for Time Domain Characterization of UWB Components and Systems, Universitätsverlag Karlsruhe, 2009.
22. N. Dib, L. P. B. Katehi, G. E. Ponchak, R. Simons, Theoretical and experimental characterization of coplanar waveguide discontinuities for filter applications, IEEE Transactions on Microwave theory and Techniques vol. 39, n° 5, pp. 873-882, 1991.
23. N. Dib, G. E. Ponchak, L. P. B. Katehi, Theoretical and Experimental Study of Coplanar Waveguide Shunt Stubs, IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques, pp. 38-44, vol. 41, n° 1, 1993.
24. K.Hettak, N.Dib, A.Omar, G. Y. Delisle, M. Stubbs, A Useful New Class of Miniature CPW Shunt Stubs and its Impact on Millimeter-Wave Integrated Circuits, IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques, pp. 2340-2349, vol. 47, n° 12, 1999.
25. K.Hettak, N.Dib, A. F. Sheta, S.Toutain, A Class of Novel Uniplanar Series and Their Implementation in Original Applications, IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques, pp. 1270-1275, vol. 46, n° 9, 1998.
26. N. Dib, « Comprehensive study of CAD models of several coplanar waveguide (CPW) discontinuities », IEE Proceedings - Microwaves, Antennas and Propagation, vol. 152, n° 2, p. 69, 2005.



## 3. FABRICATION ET CARACTÉRISATION DES COMPOSANTS

### SOMMAIRE

INTRODUCTION .....	65
<b>3.1. FABRICATION DES OLEDs</b> .....	65
3.1.1. Les exigences .....	65
3.1.2. Substrats et types d'échantillons .....	65
3.1.3. Les phases de fabrication .....	66
3.1.4. Phase 1 : Structuration des électrodes .....	67
3.1.4.1. <i>Le nettoyage</i> .....	67
3.1.4.2. <i>Lithographie</i> .....	68
3.1.4.3. <i>La gravure</i> .....	71
3.1.5. Phase 2 : Métallisation des lignes .....	72
3.1.6. Phase 3 : Dépôt de l'hétérostructure organique .....	73
3.1.6.1. <i>L'empilement</i> .....	73
3.1.6.2. <i>Evaporation sous vide</i> .....	75
3.1.6.3. <i>Stockage, encapsulation</i> .....	77
3.2. SYSTEME DE CARACTERISATIONS .....	78
3.2.1. Station de mesure sous pointe .....	78
3.2.2. Caractéristique JVL à bas niveau .....	79
3.2.3. Mesures électrique et optique résolues en temps en régime impulsionnel .....	80
3.2.4. Mesures d'impédance .....	80
3.2.5. Mesure de spectre en continu .....	81
3.2.6. Spectre résolu en temps en régime d'excitation impulsionnelle .....	81
3.3. EXPLOITATION DES MESURES .....	82
3.3.1. Extraction du modèle électrique de l'OLED .....	82
3.3.2. Quantification de l'émission lumineuse .....	83
3.3.2.1. <i>Principe de la mesure</i> .....	83
3.3.2.2. <i>Bilan énergétique de la chaîne de mesure</i> .....	85
3.3.2.2.1. <i>Emission interne</i> .....	86
3.3.2.2.2. <i>Couplage externe (OLED / substrat / air)</i> .....	86
3.3.2.2.3. <i>Pertes de Fresne</i> .....	87
3.3.2.2.4. <i>Schéma de mesure n° 1 : couplage direct OLED/photodiode</i> .....	87
3.3.2.2.5. <i>Schéma de mesure n°2 : couplage OLED – fibre – photodiode</i> .....	88
3.3.2.2.6. <i>Schémas de mesure 3 : couplage OLED – fibre – focalisation – photodiode</i> .....	91
3.3.2.2.7. <i>Synthèse</i> .....	92
3.3.2.3. <i>Etalonnage de la chaîne de mesure</i> .....	92
3.3.2.3.1. <i>La source étalon et système de mesure calibrée</i> .....	93
3.3.2.3.2. <i>Mesure de spectre et mesure en boîte noire</i> .....	93
3.3.2.3.3. <i>Mesure sur la chaîne de mesure optique</i> .....	94
3.3.2.3.4. <i>Synthèse et application numérique</i> .....	94
CONCLUSION .....	95
REFÉRENCES .....	96



## INTRODUCTION

Ce chapitre, est dédié à la description des moyens expérimentaux mise en œuvre aussi bien pour la fabrication des  $\mu$ -OLEDs rapides (§3.1) que pour leurs caractérisations (§3.2). Y sont décrits aussi bien les procédés de fabrication que les bancs expérimentaux permettant les différents types de mesures. Une attention particulière est accordée au processus de structuration des électrodes qui constitue la rupture avec laquelle nous espérons atteindre des temps de réponse de l'ordre de la nanoseconde (§3.1.4 et §3.1.53), tandis que les outils de traitements des mesures sont décrits dans la section §3.3.

### 3.1. FABRICATION DES OLEDs

#### 3.1.1. Les exigences

La fabrication des OLEDs rapides doit répondre aux exigences identifiées au chapitre 2 :

- assurer la continuité d'impédance entre la source d'excitation et l'hétéro-structure organique sur la plage de hautes fréquences contenues dans l'impulsion ; pour cela nous proposons de positionner l'OLED sur une électrode coplanaire CPW ;
- définir la position et les dimensions ( $e \times D$ ) de l'OLED (face anode / ITO) ;
- intégrer des résistances de charge  $R_C$  sur le substrat au plus près de l'OLED.

#### 3.1.2. Substrats et types d'échantillons

Le substrat initial est une lame de verre de dimensions  $25\text{mm} \times 17\text{mm} \times 700\mu\text{m}$  et d'indice de réfraction 1.5 dont l'une des faces est entièrement recouverte d'un film d'ITO d'épaisseur moyenne  $140\text{nm}$ , d'indice de réfraction entre 1.8 et 1.9 et de résistivité  $15\Omega/\text{carré}$ . Il est commercialisé par LUMTEC – Luminescence Technology Corp, Taïwan.

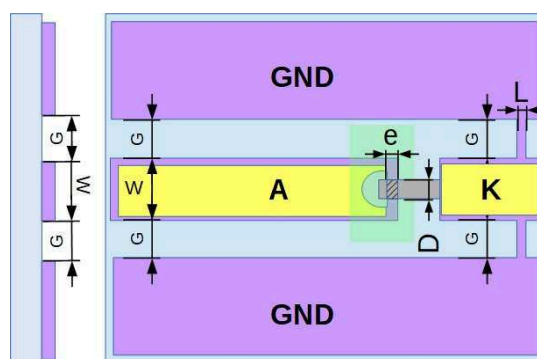


Figure 3.1 : Structure de l'OLED sur substrat de verre

Les dimensions utilisées pour les lignes CPW et les résistances de charge  $R_C$  sont renseignées dans le *Tableau 3.1*.

Les variantes  $a$ ,  $b$  et  $c$  vont permettre d'étudier l'effet de la surface active sur les temps de réponses des  $\mu$ -OLEDs.

Tableau 3.1 : Tableau des dimensions réalisées sur le substrat d'OLED

Type d'échantillon	$e(\mu m)$	Métallisation ?	$H(\mu m)$	$W(\mu m)$	$G(\mu m)$	$L \times G(\mu m^2) /$ Valeur de $R_C$
<i>ech1a</i>	25	NON	700	1000	243	125x243
<i>ech1b</i>	50					
<i>ech1c</i>	100					
<i>ech2a</i>	25	OUI	700	1000	243	/
<i>ech2b</i>	50					
<i>ech2c</i>	100					

Les échantillons de type *ech1*, non métallisés, ont été chronologiquement réalisés et testés en premier. Les échantillons de type *ech2* métallisés sont venus en deuxième itération pour prendre en compte quelques difficultés rencontrées avec la première série, notamment :

- les pertes ohmiques élevées, avec pour conséquence la nécessité de tension d'excitation trop élevée pour atteindre les fortes densités de courant ;
- la difficultés d'effectuer des mesures d'impédance en raison de très grande valeur de résistance sur les pistes (il est difficile d'effectuer au VNA des mesures fiables d'impédance au delà de quelques centaines d'Ohms).

### 3.1.3. Les phases de fabrication

La fabrication des  $\mu$ -OLED se découpe en 3 phases principales illustrées sur la *Figure 3.2* :

- Phase 1 : préparation du substrat et gravure de l'ITO (§3.1.4)

La face transparente et conductrice du substrat va subir des étapes de structuration par gravure plasma pour définir la géométrie des électrodes rapides et y intégrer la résistance de charge.

- Phase 2 : métallisation des électrodes (§3.1.5)

La résistivité du film d'ITO n'étant pas négligeable ( $15\Omega / \text{carré}$ ), une étape de métallisation, qui consiste à déposer une double couche chrome et or (ou d'argent) sur l'ITO structuré, à l'exception de la zone active et des composants passifs intégrés, va permettre de minimiser les effets résistifs du circuit.

- Phase 3 : dépôt de l'hétérostructure organique (§3.1.6)

Les échantillons réalisés sans métallisation seront fabriqués en appliquant la phase 3 directement après la phase 1.



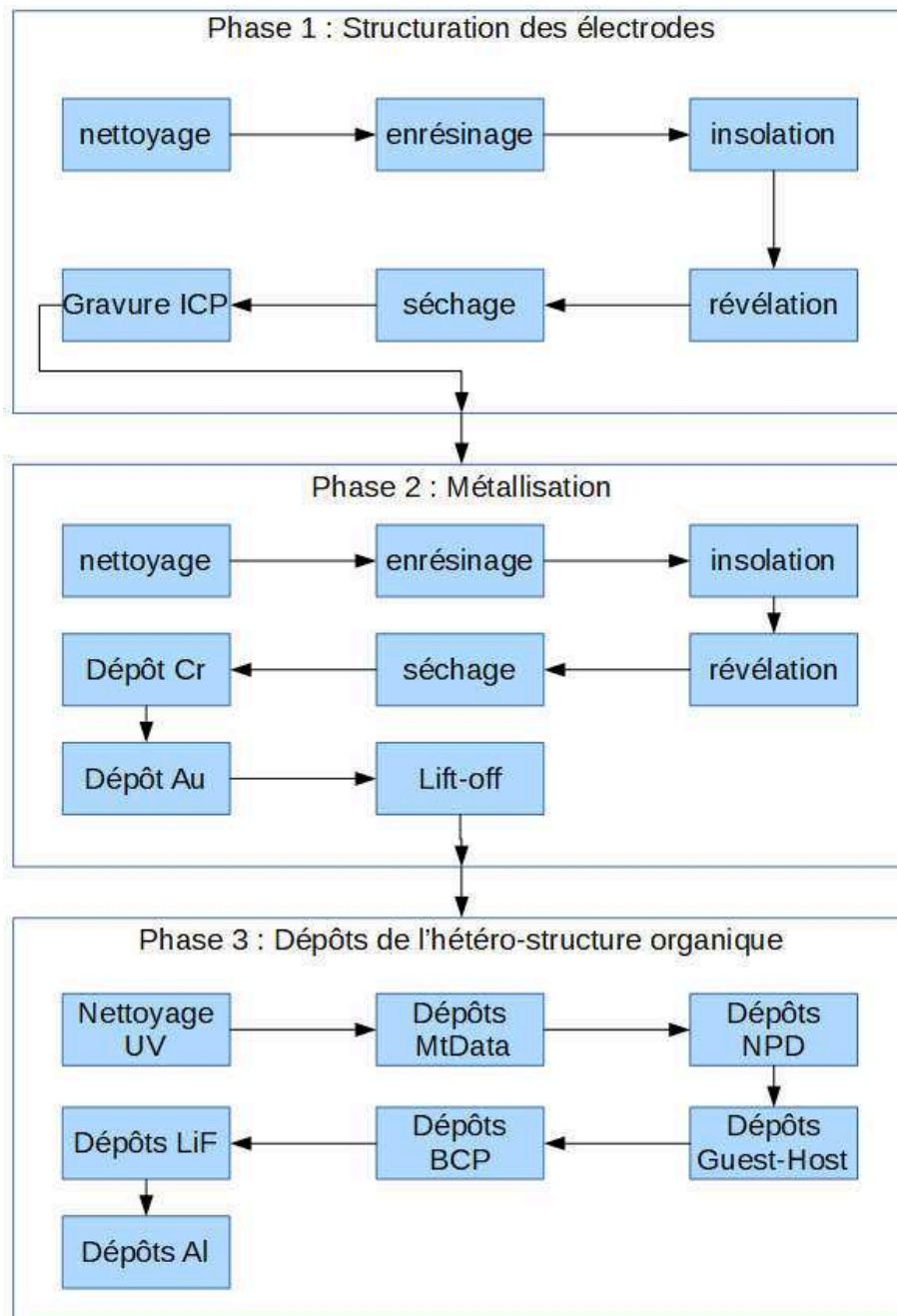


Figure 3.2 : Phasage et étapes du procédé de fabrication des OLED

### 3.1.4. Phase 1 : Structuration des électrodes

#### 3.1.4.1. Le nettoyage

L'objectif du nettoyage est de réaliser un traitement chimique de surface de l'ITO afin d'éliminer les éléments contaminants. Le procédé classique est une succession de bains d'acétone sous ultrasons, puis d'éthanol, d'isopropanol, et d'eau désionisée chacun sous ultrasons pendant 5min. Elle se termine par une étape de séchage au pistolet d'azote suivie d'une étape d'étuvage.

### 3.1.4.2. Lithographie

La lithographie consiste à transférer l'image d'un masque ou d'un motif numérisé sur un substrat préalablement couvert :

- soit d'une résine photo-sensible (sensible aux rayons ultraviolets), on parle alors de lithographie optique ou photolithographie ;
- soit d'une résine électro-sensible (sensible à un faisceau d'électrons), on parle alors de lithographie électronique (ou Electron Beam Lithography – EBL).

Seule la technique de lithographie optique a été utilisée dans ce travail, pour structurer la géométrie et le circuit électrique de l'OLED. De manière générale, la lithographie peut se décomposer en trois étapes essentielles successives que sont l'enrésinement, l'insolation et le développement.

#### L'enrésinement

Le substrat est dans un premier temps recouvert, par enduction centrifuge (ou « spin-coating »), de résine photosensible en couche mince. Le principe consiste à déposer, à la pipette, une petite quantité de résine sur le substrat (*Figure 3.3a*) et à l'étaler par centrifugation à la tournette sur la totalité de la surface du substrat par sa mise en rotation à une succession de vitesses contrôlées (*Figure 3.3b* et *c*).

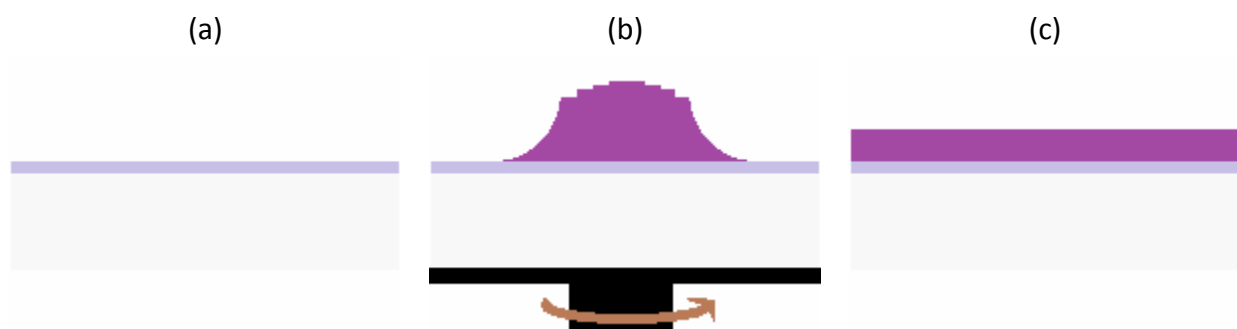


Figure 3.3 : Enrésinement.

Quelques gouttes de résine sont déposées sur la face métallisée du substrat (b). L'étalement à la tournette à vitesse appropriée permet d'obtenir un film d'épaisseur uniforme (c)

□ = Substrat de verre, ■ = ITO, ■ = Résine

Dans sa phase initiale d'accélération, le mouvement de rotation permet le pré-étalement et l'élimination du surplus de résine. Une phase de rotation uniforme à grande vitesse fixe et uniformise l'épaisseur du film de résine.

Après l'étalement, le film de résine photosensible est immédiatement soumis à la chaleur afin d'éliminer les solvants résiduels par évaporation. On parle alors de (pré)-recuit. Le chauffage des substrats peut s'effectuer soit sur plaque chauffante (conduction thermique), soit dans une étuve de laboratoire (convection). Le temps de recuit est de l'ordre de

quelques secondes ou minutes sur plaque chauffante contre plusieurs heures à l'étuve pour des températures autour de  $100^{\circ}\text{C}$ .

Le choix de la résine et de son épaisseur sont dictés, non seulement par le type de lithographie (optique ou électronique), mais aussi par les procédés post-lithographie (gravure humide ou sèche, lift-off, etc ...). La résine épaisse AZ1518 a été retenue pour la photolithographie de gravure. L'épaisseur optimale est de  $1800\mu\text{m}$ , déposée avec une vitesse de rotation de  $4000\text{tr}/\text{min}$  pendant 1 min.

### **L'insolation**

L'insolation a pour but de transcrire le motif d'un masque dans l'épaisseur de la résine. Le principe consiste à exposer certaines zones de la résine photosensible (Figure 3.4), à un rayonnement UV ou à un faisceau électronique selon le type de lithographie. Dans les zones exposées, la résine subit, en fonction de sa sensibilité et du degré d'exposition, une transformation chimique qui améliore ou dégrade sa tenue aux solutions de développement (Figure 3.4c). La résine est dite « positive » si sa solubilité augmente avec l'insolation ; les zones exposées seront alors dissoute plus tard dans la solution de développement. A l'inverse, la résine est dite « négative » si les parties insolées se polymérisent et deviennent alors insolubles dans la solution de développement.

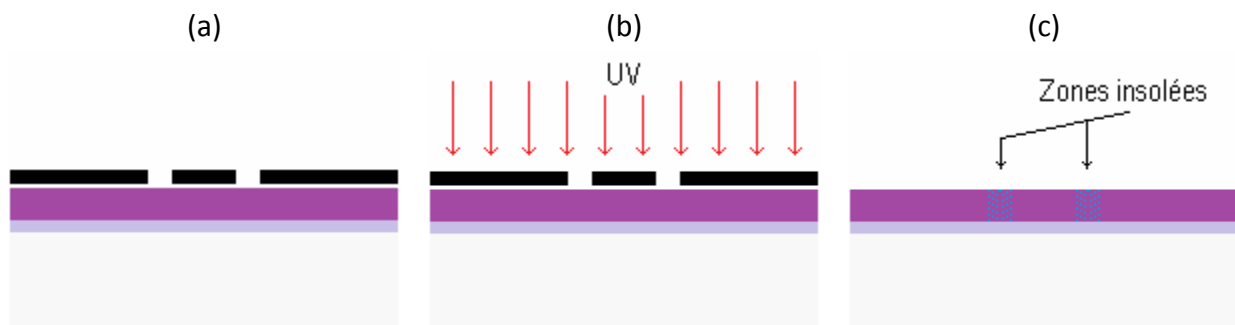


Figure 3.4 : Insolation de la résine.

Un masque physique est installé (a). Un faisceau de rayonnement UV irradie la résine à travers un masque (b). La solubilité de la résine est modifiée dans les zones insolées (c)

Dans le cas de la lithographie optique, on irradie sélectivement le film de résine photosensible avec un rayonnement lumineux, de longueur d'onde autour de  $365\text{nm}$  ou  $405\text{nm}$  (i-line, h-line respectivement), au travers d'un masque physique de Chrome sur quartz formé des zones transparentes et opaques à la lumière. La dose d'exposition est donnée par l'intensité de la source lumineuse et du temps d'exposition et se mesure en termes d'énergie par unité de surface. Les équipements utilisés dans le cadre de ce travail sont des aligneurs de masque de type MA150 et MJB4 de SÜSS MicroTec. La géométrie du composant définie au chapitre 2 et rappelée au §3.1.2 est utilisée pour concevoir et réaliser un jeu de masques de photolithographie. La Figure 3.5 est une illustration de l'un des masques réalisés avec divers motifs.

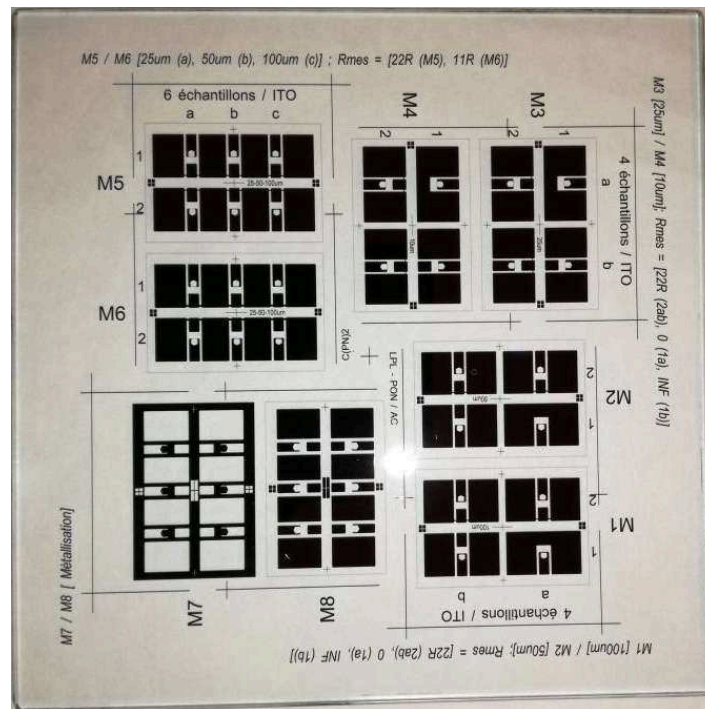


Figure 3.5 : Masques de photolithographie à plusieurs motifs

Selon le motif choisi, il permet d'intégrer sur le même substrat quatre OLED (M1, M2, M3, M4) ou six (M5, M6, M7, M8). Sa conception graphique s'est fait à l'aide de l'outil logiciel Clewin et sa réalisation sur support de verre chromé a été effectuée à « femto-st ». Les dimensions des motifs pouvant être reproduits avec fiabilité par lithographie optique se limitent autour du micron en raison des problèmes de diffraction de la lumière.

La durée d'insolation avec la résine AZ1518 est de  $12s$  avec une lampe de puissance moyenne  $15mW / cm^2$ , ce qui constitue une dose de  $180mJ / cm^2$ .

### Le développement

Le développement consiste à révéler positivement ou négativement le motif du masque en immergeant le substrat recouvert de résine insolée dans une solution de développeur. Les zones de la résine qui ont été fragilisées (ou consolidées) par l'insolation vont alors se dissoudre (ou résister) à la solution de développement. Les zones de résine non dissoute restant sur le substrat décrivent alors le motif souhaité (Figure 3.6).



Figure 3.6 : Développement du masque de résine : La solution de développement dissout les zones insolées de la résine (voir Figure 3.4c) et laisse apparaître un masque de résine

Les échantillons recouverts de résine photosensible AZ1518 et insolés ont été plongés dans la solution développement, AZ351B dilué dans quatre volume d'eau, pendant 30s puis rincés à l'eau désionisée.

### 3.1.4.3. La gravure

Le but de la gravure est de transférer ce masque dans la couche métallique d'ITO en attaquant les zones non recouverte par le masque. Deux techniques ont été expérimentées dans ce cadre : la gravure dite chimique ou « humide » et la gravure dite « sèche » qui utilise des plasmas.



Figure 3.7 : Gravure – transfert du motif du masque de résine dans la couche d'ITO

La recette standard de gravure par voie humide de l'ITO se fait par immersion de l'échantillon dans un bain d'eau régale. Après gravure et rinçage à l'eau, le film de résine et les traces d'organiques sont enlevés par bain de solvants sous ultrasons. Le séchage s'effectue par soufflette à l'azote. La solution de gravure est composé d'eau, d'acide chlorhydrique et d'acide nitrique ( $H_2O:HCl:HNO_3/5:4:1$ ) à température ambiante. Cette technique de gravure, initialement adoptée en raison de sa simplicité de mise en place et la possibilité de traiter simultanément un grand nombre d'échantillons, a finalement été abandonnée, au profit de la gravure plasma. En effet, elle a l'inconvénient d'être peu reproductible, d'être isotrope de ne pas respecter finement les limites de la résine et de rendre difficile l'identification de fin de gravure.

La gravure par plasma fait partie des gravures qualifiées de « sèche » (en phase gazeuse) par opposition à la gravure dite « humide ». Il en existe de nombreuses variantes qui peuvent être classé par catégorie suivant le type de gravure privilégié, selon qu'elle soit physique, chimique ou bien la combinaison des deux mécanismes :

- La gravure par bombardement ionique (IBE – Ion Beam Etching). Un faisceau d'ions énergétiques issus d'un gaz d'atomes lourds est utilisé pour pulvériser physiquement la surface du matériau à graver, afin d'arracher les molécules ou atomes des zones non protégées par la résine.
- La gravure chimique en phase vapeur. Un gaz est injecté pour attaquer chimiquement la surface à graver moyennant un chauffage de l'échantillon.
- La gravure de type RIE (Reactive Ion Etching). Cette technique combine à la fois la pulvérisation induite effet de bombardement ionique et l'attaque d'espèces chimiques du plasma pour réaliser la gravure.

Cette dernière technique est celle utilisée dans le cadre de ce travail. Elle a l'avantage de garantir des profils de gravure verticaux contrairement à la gravure humide. Le réacteur de gravure utilisé est le modèle 200IL du fabricant CORiAL, équipé de lignes de gaz fluoré et chloré. Le réacteur n'étant pas équipé d'un système de contrôle de profondeur de gravure, il a fallu passer par une phase d'étalonnage pour trouver la durée de gravure correspondant à la profondeur de gravure souhaitée et la bonne épaisseur du masque de résine.

Voici la recette de gravure appliquée :

- Pression : 10mTorr
- T = 20°C
- Puissance RF : 200W
- Puissance ICP : 300W
- Flux Cl<sub>2</sub> : 30sccm
- Flux C<sub>2</sub>H<sub>4</sub> : 7sccm
- Flux Ar : 50sccm
- Flux He : 10sccm

### 3.1.5. Phase 2 : Métallisation des lignes

Elle consiste à déposer une double couche de chrome /or sur l'ITO structuré, à l'exception de la zone active et des composants intégrés (résistances de charge du circuit). Son but est de minimiser les effets résistifs parasites du circuit structuré dans l'ITO.



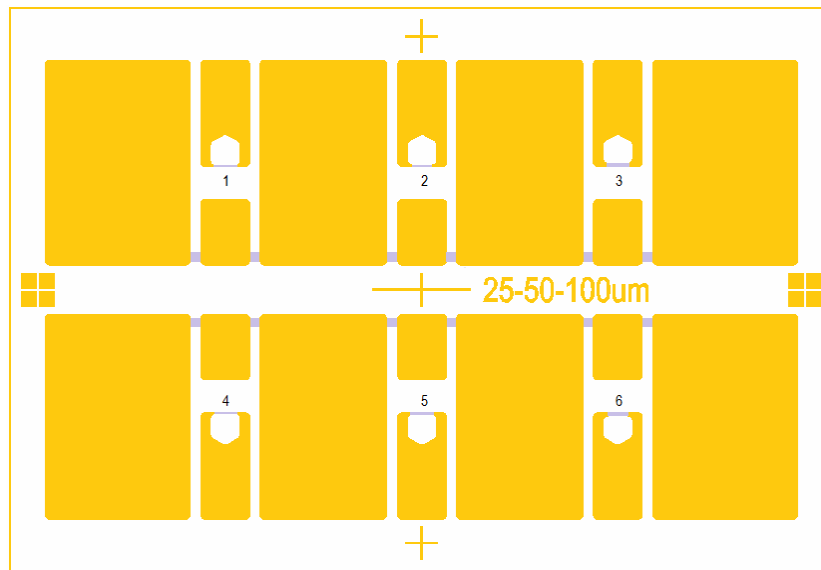
Figure 3.8 : Métallisation

*Un film d'or est déposé sur les lignes gravées d'ITO pour améliorer sa conductivité*

Comme dans le cas de la gravure, elle démarre par une étape de lithographie qui consiste ici à creuser dans une résine le motif à métalliser. Le film métallique est ensuite déposé sur l'échantillon par évaporation thermique. Il forme alors une couche mince continue supportée par la résine, sauf dans les zones exposées lors de la lithographie où la couche repose directement sur le substrat. Enfin la résine est dégagée, en plongeant l'échantillon dans un solvant, entraînant avec elle la couche qu'elle supporte. Après le lift-off ne subsistent plus que les parties du film de métallisation directement en contact avec le substrat (Figure 3.8). Ci-après sont récapitulés les paramètres de photolithographie avec la résine AZ5214E en mode inversion d'image.

- Bain d'acétone : 5 minutes
- Bain d'éthanol : 5 minutes
- Bain d'isopropanol : 5 minutes
- Séchage à la soufflette d'azote
- Enrésinement : AZ5214E/ 4000 tr/min
- Pré – Recuit : 110°C / 1min
- Insolation :  $\sim 15\text{mW}/\text{cm}^2 - 12\text{s}$
- Post – Recuit : 120°C / 2min
- Exposition (sans masque) :  $15\text{mW}/\text{cm}^2 - 20\text{s}$
- Développement : AZ351B : H<sub>2</sub>O (1 : 4)
- Rinçage à l'eau désionisée
- Séchage par jet d'azote

L'étape de dépôt chrome / or se fait pas évaporation sous vide. Après métallisation, l'échantillon a la structure de la *Figure 3.9*.



*Figure 3.9 : Surface structurée d'un substrat prête à accueillir six OLED*

La largeur mesurée du ruban central transportant le signal et l'espace entre ce ruban et les plans de masse sont respectivement de  $1000\mu\text{m}$  et  $243\mu\text{m}$ . Ces dimensions ont été adoptées pour assurer la compatibilité avec les sondes SGS disponibles qui ont un « pitch » de  $2000\mu\text{m}$ .

### 3.1.6. Phase 3 : Dépôt de l'hétérostructure organique

#### 3.1.6.1. L'empilement

La *Figure 3.1* schématise l'empilement des couches organiques utilisées dans le cadre de ce travail ainsi que leurs niveaux d'énergie. Il s'agit d'une structure optimisée et utilisée déjà dans plusieurs travaux de thèse précédents en raison de ses efficacités [1]. Leurs propriétés essentielles, notamment leurs niveaux énergétiques sont reprises dans le *Tableau 3.2*.

Les niveaux des bandes d'énergies de l'hétéro-structure organique sont indiqués sur la *Figure 3.10b*. Le rôle de couche d'injection de trous est assuré par le m-MTDATA qui possède à la fois un niveau énergétique HOMO ( $5eV$ ) proche du travail de sortie de l'ITO ( $4.75eV$ ) et une mobilité de trous importante. Le NPD, caractérisé par une mobilité de trou relativement importante et un niveau HOMO intermédiaire entre celui de la couche d'injection de trou et celui de la couche émettrice, assure le transport de trous vers la couche émissive. La couche émettrice est composée de la matrice d'Alq3 (Aluminum (III) tris(8hydroxyquinolate)) et du dopant, le DCM (4-(dicyanométhylène)-2-méthyl-6-(pdiméthylaminostyryl)-4H-pyran) qui joue le rôle de colorant organique. Sa concentration dans la matrice hôte doit être typiquement inférieure à 5%. Le BCP joue le rôle bloqueur de trous. Son niveau HOMO significativement bas ( $6.7eV$ ), permet de créer un confinement des trous au sein de la

couche émettrice en limitant spatialement la zone de recombinaison et en évitant la diffusion des trous dont la mobilité est supérieure à celle des électrons.

L'Alq3 est réutilisée comme couche de transport d'électrons. Au niveau LUMO, les barrières énergétiques sont quasi inexistantes jusqu'à la couche d'émission, ce qui facilite le transport des électrons. La relative grande barrière énergétique entre les niveaux HOMO des couches Alq3:DCM et NPD permet le confinement des électrons au sein de la couche d'émission où ils peuvent alors se recombiner avec les trous retenus à l'interface couche émettrice / BCP, et émettre des photons.

Le judicieux agencement des couches organiques permet de forcer les recombinaisons électron-trou à se produire dans la couche émettrice, et d'éviter une luminescence parasite dans les couches adjacentes.

Une fine couche de LiF d'environ  $1\text{nm}$ , insérée entre la cathode d'aluminium et les organiques permet d'abaisser le travail de sortie de la cathode à  $2.9\text{eV}$  [2, 3], au lieu de  $4.2\text{eV}$  pour l'aluminium seul, et surtout d'améliorer les caractéristiques I-V et les rendements de luminescence.

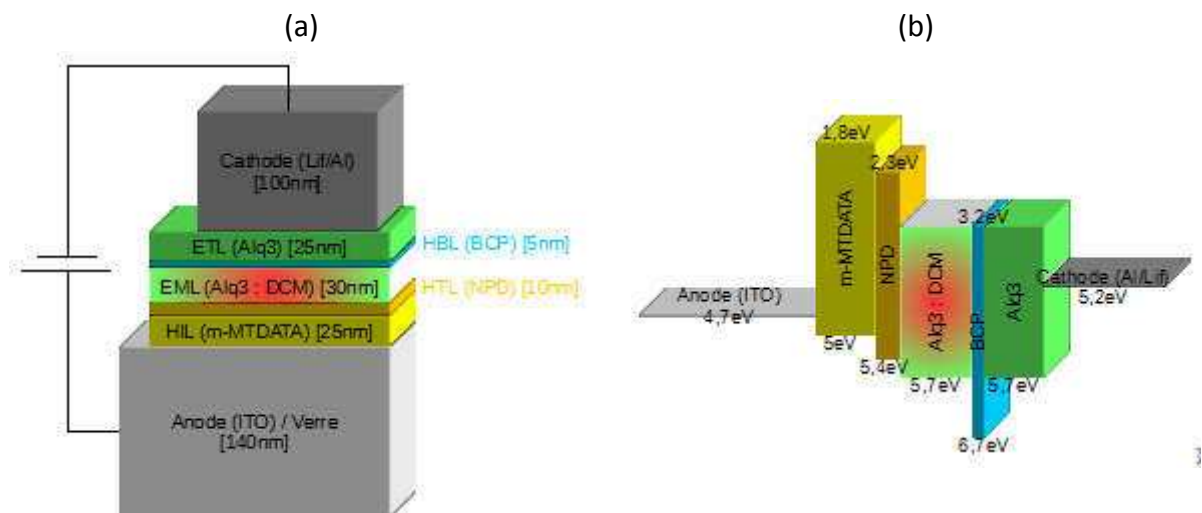


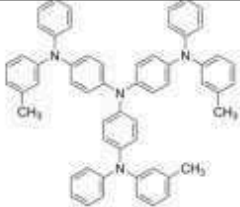
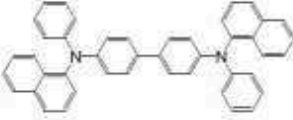
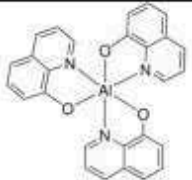
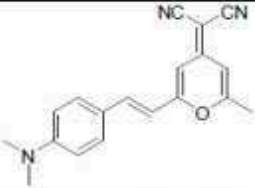

Figure 3.10 : Structure de l'OLED

(a) Empilement de couches organiques et métalliques. (b) Niveaux d'énergie de différentes couches

L'ensemble des matériaux organiques utilisés ainsi que leur structure moléculaire et leurs niveaux énergétiques HOMO-LUMO sont listés dans le *Tableau 3.2*.



Tableau 3.2 : Matériaux et composés utilisés dans l'hétéro-structure organique [1]

Nom complet	Abréviation	Formule topologique	LUMO   HOMO ou $\Phi_M$	Application
4,4',4''-tris [phenyl (m-tolyl) amino] triphenylamine	m-MTDATA		1.8eV   5eV	HIL
N,N'-bis(naphthalen-1-yl)- N,N'-bis(phenyl)-benzidine ou N,N'-Di(1-naphthyl)-N,N'- diphenyl-(1,1'-biphenyl)-4,4'- diamine	NPB ou NPD		2.3eV   5.5eV	HTL
Tris-(8-hydroxyquinoline) aluminum	Alq3		3.2eV   5.7eV	HBL / ETL EML à 525 nm
4-(dicyanomethylene)-2- methyl-6-(p- dimethylaminostyryl)-4H- pyran	DCM		3.5eV   5.8eV	colorant 600 nm
2,9-dimethyl-4,7-diphenyl- 1,10-phenanthroline	BCP		3.2eV   6.7eV	ETL / HBL
Fluoride Lithium	LiF	-	-	EIL
Aluminium	Al	-	4.06 – 4.26 eV	Cathode
Silver	Ag	-	4.26 – 4.74 eV	Cathode ou Anode
Indium Tin Oxide	ITO	-	4.17 – 4.78 eV	Anode

### 3.1.6.2. Evaporation sous vide

Les matériaux organiques et la cathode d'Aluminium sont déposés tour à tour sur le substrat par une évaporation thermique sous vide. Le principe, voir *Figure 3.11*, consiste à chauffer, grâce à un système de résistances, le creuset dans lequel est disposé le matériau à évaporer qui peut être sous forme de poudre (pour les organiques), de lingot ou de paillettes (pour les métalliques). Tout se passe dans une enceinte où règne un vide secondaire de l'ordre de  $10^{-7}$  Torr. Une fois la température de sublimation atteinte et la vitesse d'évaporation stabilisée sur la valeur souhaitée, le système de caches protégeant le substrat pendant la

phase de chauffage est ouvert et le matériau chauffé peut alors se déposer sur les substrats disposés au dessus du creuset au travers d'un jeu de deux masques dont l'un dédié aux organiques (Figure 3.12b) et l'autre à la cathode (Figure 3.12d). L'épaisseur de la couche déposée est contrôlée in situ, à quelques Å près, par une microbalance piézoélectrique à quartz située à proximité des échantillons. Les Figure 3.12a, c et e représentent l'aspect de l'échantillon à différentes étapes du processus de dépôt.

Le bâti d'évaporation utilisé est un modèle de MHS Equipment (Figure 3.13)

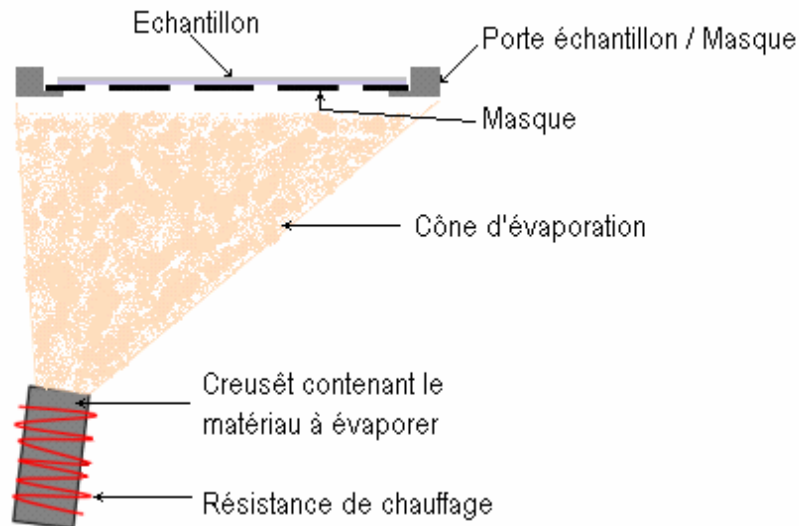


Figure 3.11 : Principe du dépôt de couches minces organiques par évaporation thermique

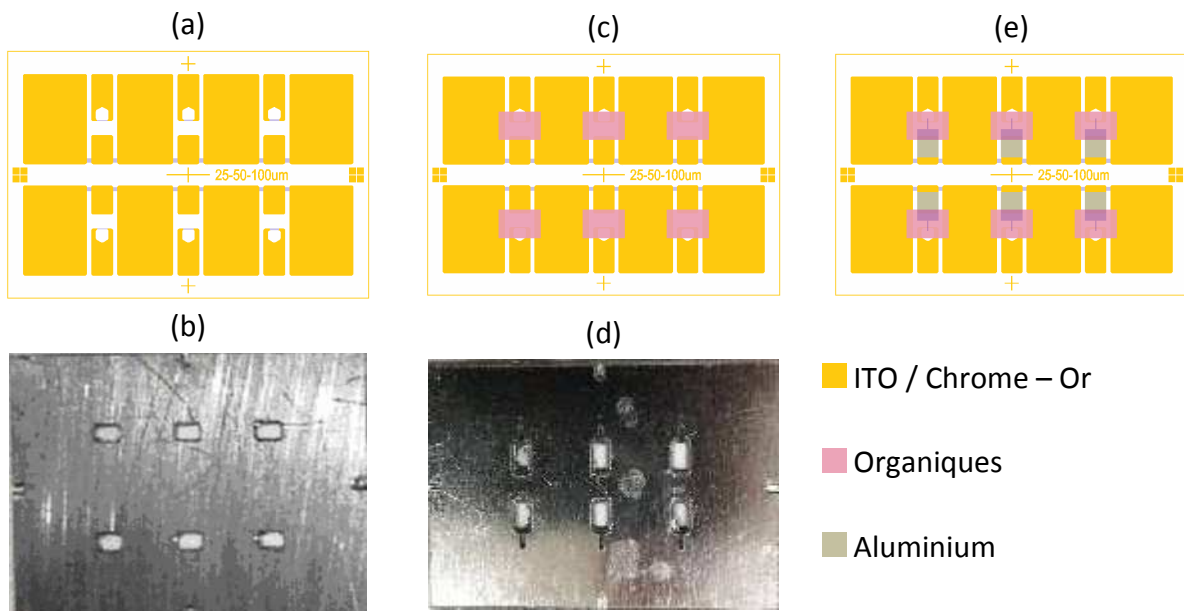


Figure 3.12 : Etapes et masques de dépôt d'OLED

(a) Surface métallisée du substrat après structuration de sa surface ; (b) masque de dépôt d'organique « fait maison ». (c) substrat après évaporation des organiques ; (d) masque d'évaporation de la cathode ; (e) OLED finie



Figure 3.13 : Bâtiment d'évaporation MHS équipé (à droite) et commande électronique (à gauche), couplé à une boîte à gants (derrière)

### 3.1.6.3. Stockage, encapsulation

L'OLED comme la plupart des composants électroniques organiques ont une durée de vie assez limitée, ne dépassant pas quelques heures à l'air libre. Cette instabilité peut être attribuée à l'altération des matériaux organiques de petites molécules, la migration des espèces ioniques, la dégradation des électrodes ou des interfaces par réactions électrochimiques, la croissance des taches sombres ou l'effet de la vapeur d'eau et de l'oxygène [4-8]. Des études comparatives menées par Adachi et al ont rapporté que la luminance d'une OLED passait de  $115\text{cd}/\text{m}^2$  à  $1\text{cd}/\text{m}^2$  en 2.5h à atmosphère ambiante contre 15h sous vide pour arriver au même niveau de dégradation. Elles indiquent que la vapeur d'eau et l'oxygène sont les raisons principales de la dégradation de l'OLED [9]. Schaer et al. ont constaté que la vapeur d'eau est de loin la plus destructrice à température ambiante [8]. Par conséquent, de tels dispositifs nécessitent d'être protégés de la vapeur d'eau et de l'oxygène si on veut leur assurer une durée de vie adéquate. Des études suggèrent que les taux de perméabilité tolérable ne dépassent pas  $10^{-6}\text{g}/\text{m}^2/\text{jour}$  pour la vapeur d'eau ou  $10^{-3}\text{cc}/\text{m}^2/\text{jour}$  pour l'oxygène dans la plupart des cas [10]. Pour s'en prémunir, les échantillons produits sont transférés, sans remise à l'air, dans une boîte à gants sous azote à environnement contrôlé en oxygène et humidité, pour éviter toute dégradation en attendant leurs utilisations. L'étape ultime de protection contre l'environnement extérieur est l'encapsulation, qui consiste à placer un barrage d'étanchéité

autour de la zone active du composant, et y adjoindre un « getter » c'est à dire un élément absorbant l'humidité résiduelle afin de porter sa durée de vie à des milliers d'heures.

### 3.2. SYSTEME DE CARACTERISATIONS

La démarche menée pour mettre au point des OLEDs rapides nécessite de vérifier et de confirmer plusieurs propriétés électriques et optiques aussi bien à l'état stationnaire qu'en régime d'impulsions. Ceci nécessite des mesures en régime continu et résolues en temps :

- Caractérisations en régime continu :
  - Mesure en régime continu de courant et d'intensité lumineuse en fonction de la tension appliquée (caractéristique  $I(V)$  et  $L(I)$  en continu à bas niveau) ; il s'agit d'une mesure de qualification en vue de vérifier le bon fonctionnement du dispositif, notamment pour écarter toute hypothèse de court-circuit avant les mesures en impulsionnel.
  - Mesures spectrales d'électroluminescence en régime continu. En plus d'être une autre mesure de qualification, le spectre d'émission de l'OLED est indispensable pour les calculs de calibration du banc de mesure optique.
  - Mesure au multimètre de la résistance de charge intégrée.
- Caractérisations résolues en temps en régime impulsionnel
  - Mesures résolues temporellement de réponses électrique (tensions et courants) et optique (intensité lumineuse) à une excitation électrique (tension).
  - Mesures spectrales résolues temporellement (caméra à balayage de fente) : permet de visualiser le degré de variance du spectre dans le temps afin d'apprécier la validité du spectre continu dans les mesures d'étalonnage.
- Mesures d'impédances multifréquences (à l'analyseur de réseaux vectoriel VNA).

Plusieurs bancs de mesure ont été mis en place à ces effets. Un PC et des programmes Matlab / Labview ont permis d'automatiser partiellement les opérations. Toutes les mesures ont été effectuées à l'air ambiant. Leurs principes de réalisation sont décrits dans les paragraphes qui suivent.

#### 3.2.1. Station de mesure sous pointe

Pour toutes les mesures de caractérisation, l'OLED est positionnée par aspiration, sur une station sous pointe manuelle PM5 de chez Cascade, voir *Figure 3.14*. L'accès au composant à caractériser se faisant en guide coplanaire, une transition du coaxial vers coplanaire est nécessaire. Deux sondes spécifiques RF GSG, de « pitch »  $2000\mu\text{m}$ , et munies chacune d'un connecteur coaxial, assurent cette fonction ; l'une sert à amener le signal d'excitation et l'autre à collecter le signal de réponse électrique.

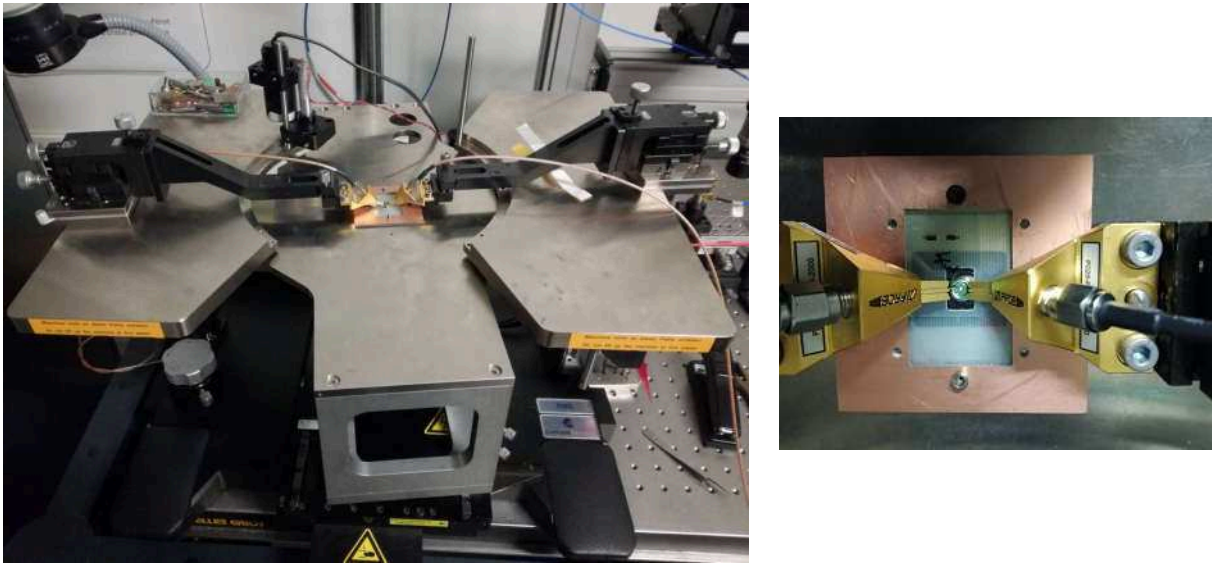


Figure 3.14 : Photo de la station sous pointe

### 3.2.2. Caractéristique JVL à bas niveau

Le principe consiste à appliquer une tension continue croissante et contrôlable à l'OLED et à mesurer le courant qui la traverse et celle de l'intensité lumineuse induite par ce courant.

Elle s'est fait à bas niveau, c'est-à-dire pour des tensions d'excitation relativement faible, à l'aide d'un banc de test équipé d'un sourcemètre Keithley 2635A pour alimenter l'OLED en tension et acquérir la valeur du courant correspondant et d'un puissance-mètre optique Newport 2935C couplé à une photodiode calibré Newport 918D-UV-OD3R qui permet d'acquérir l'intensité lumineuse pour chaque tension d'excitation. Un ordinateur permet de piloter ces équipements et d'acquérir les données de mesures à l'aide de scripts Matlab.



Figure 3.15 : Photo du banc de caractérisation JVL à bas niveau  
sourcemètre Keithley 2635A / photodiode Newport 918D / puissance mètre optique Newport 2935C

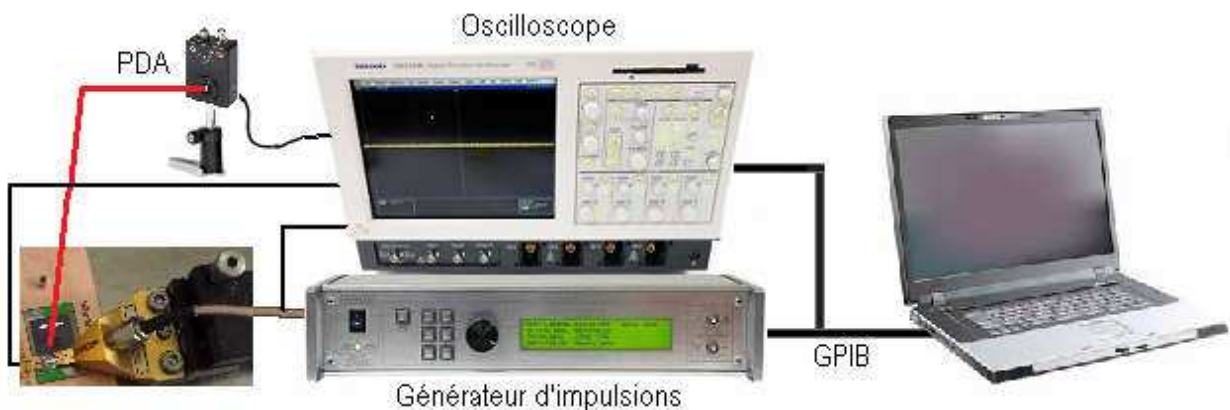
La mesure d'intensité lumineuse se fait au bout d'une fibre dont l'autre extrémité est disposée à la normale au contact de la surface d'émission de l'OLED. Le schéma de principe du banc de mesure est illustré en Figure 3.15. Les grandeurs mesurées sont la tension

d'excitation appliquée, le courant de diode et la luminance. La densité de courant associée est déduite par calcul en faisant le rapport du courant à la surface effective de l'OLED.

### 3.2.3. Mesures électrique et optique résolues en temps en régime impulsionnel

Les mesures de caractéristique courant – tension – luminance en continu telles que présentées au paragraphe précédent permettent d'atteindre des densités de courant de l'ordre de quelques centaines de milliampères par centimètre carré. Pour les densités de courants d'ordre supérieures, il y a un grand risque de claquage de l'OLED sous l'effet la puissance dissipée par effet Joule. Le régime des impulsions permet alors prendre le relais en appliquant des impulsions de tension élevée sur de très courte durée avec un faible taux de répétition. On arrive ainsi à injecter des densités de courant pouvant atteindre des milliers d'ampères par centimètre carré, sans dégrader l'OLED.

Le banc qui permet ces mesures de réponses électrique et optique résolues en temps sous haute excitation est équipé d'un générateur d'impulsion (AVTECH AVL-2A-B), d'un oscilloscope (Tektronix) et d'une photodiode à avalanche (THORLABS) connecté conformément à la *Figure 3.16*. Le circuit de la photodiode inclut un amplificateur de trans-impédance qui traduit le photo courant en une tension de sortie mesurable et proportionnelle à l'éclairement.



*Figure 3.16 : Banc de mesures résolues en temps des réponses en courant et en luminance à une impulsion de tension*

Un ordinateur (non représenté), permet la commande et l'acquisition et la sauvegarde des données à travers des scripts Matlab. D'autres scripts permettent de déduire par calcul d'autres grandeurs, notamment la densité de courant, l'intensité lumineuse en unité absolue, les éléments du modèle électrique de l'OLED.

### 3.2.4. Mesures d'impédance

Pour les mesures d'impédance, le circuit de l'OLED est considéré comme un dipôle simple. Lorsqu'il est branché à un analyseur de réseaux vectoriel (VNA), on peut accéder à la mesure en réflexion du paramètre  $S_{11}$ , ou coefficient de réflexion, qui indique le rapport de puissance réfléchi à la puissance incidente sur une plage de fréquence prédéfinie et pour

un point de polarisation donnée. L'impédance équivalente (ou le réseau d'impédances équivalent) peut ensuite être extraite par calcul.



Figure 3.17 : Mesure d'impédance  
Analyseurs de réseaux HP 8753E / Source de tension continue Keithley 2635A

Pour corriger les erreurs de mesure, l'analyseur de réseau est pré calibré à l'aide d'un kit Open – Short – Load de trois standards de calibration comprenant un court-circuit, un circuit ouvert et une charge de  $50\Omega$ .

### 3.2.5. Mesure de spectre en continu

Le banc de mesure est constitué d'un spectromètre optique (*Ocean Optics 2000 USB*) connecté à un ordinateur pour l'acquisition du spectre et d'une source d'alimentation continue (voir *Figure 3.18*).

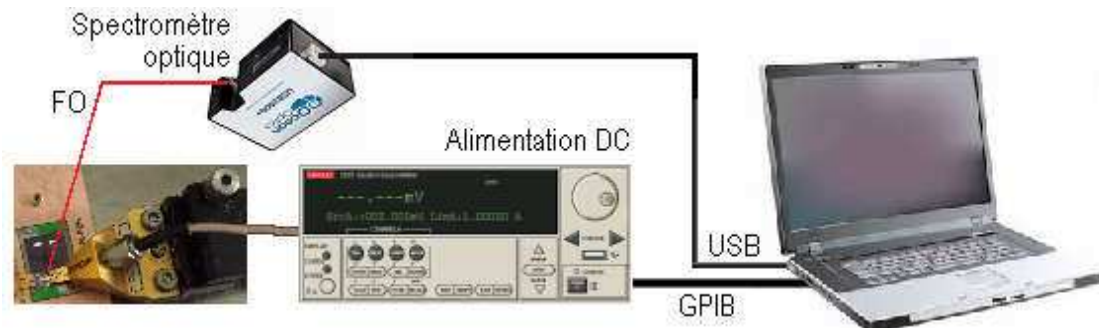


Figure 3.18 : Mesure de spectre en continu. Spectromètre Ocean Optics 2000 USB

### 3.2.6. Spectre résolu en temps en régime d'excitation impulsionnelle

Comparativement au banc précédent, la source lumineuse est excitée par un générateur d'impulsion tandis que le système de mesure est remplacé par un spectromètre couplé à une caméra à balayage de fente (voir *Figure 3.19*).



Figure 3.19 : Spectromètre à réseau HORIBA iHR 550 de Jobin-Yvon

Une telle mesure va permettre d'apprécier l'évolution du spectre dans le temps. Dans le calcul d'étalonnage du banc de mesure optique, on utilise un spectre mesuré en régime continu. Or si on veut que ces mesures soient valables en régime impulsionnel, il faudrait que le spectre d'émission ne varie pas de façon significative. Dans ce contexte par exemple la mesure de spectres optiques résolue temporellement va permettre de répondre à la validité de l'étalonnage.

### 3.3. EXPLOITATION DES MESURES

#### 3.3.1. Extraction du modèle électrique de l'OLED

A partir des données d'excitation et de réponse d'un circuit électrique, il est possible de remonter aux paramètres du circuit à l'aide de techniques d'identification de système. Les méthodes simple s'appuient sur les outils bien connus tels que la réponse impulsionnelle (ou à une impulsion de Dirac), la réponse indicelle (ou à un échelon), la réponse harmonique (ou à une excitation sinusoïdale) ... etc. Comme on peut le voir, il s'agit là de cas particuliers où l'excitation est supposée avoir une forme bien connue.

Le principe de l'identification d'un système consiste à déterminer son modèle mathématique sur la base des observations expérimentales d'entrées et de sorties [13].

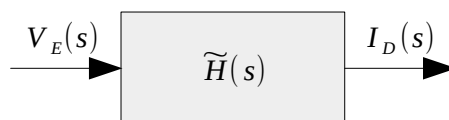


Figure 3.20 : Représentation du circuit d'OLED sous forme d'un système

$V_E$  est l'excitation électrique,  $I_D$  la réponse électrique et  $H$  sa fonction de transfert

Trois étapes sont nécessaires : d'entrée-sortie mesurées

- l'étape de modélisation qui consiste à se fixer un modèle comportant des coefficients inconnus sur la base de connaissances a priori sur le système à identifier ;



- l'étape estimation qui consiste à déterminer, à partir des données d'entrée-sortie mesurées, les paramètres (ou coefficients) inconnus du modèle de façon à minimiser l'écart entre la réponse réelle du système et celle du modèle, selon un critère donné ;
- l'étape de validation qui consiste à effectuer des tests de vérification ; il est nécessaire pour cette étape d'utiliser des données autres que celles utilisées lors de l'estimation.

Le modèle électrique de notre circuit a déjà été discuté au chapitre 2. La relation (eq 2.2) reliant l'excitation électrique  $V_E$  à la réponse électrique  $I_D$  dans l'espace temps en est une représentation. Sa transposition dans le domaine de Laplace, permet d'écrire :

$$\left[ s + \left( 1 + \frac{R_d}{R_s + R_c} \right) \frac{1}{R_d C} \right] I_D(s) = \frac{1}{R_s + R_c} \left( s + \frac{1}{R_d C} \right) V_E(s) \quad \text{Eq. 3.1}$$

Cette relation de cause à effet entre  $V_E$  et  $I_D$  correspond à un système dont la fonction de transfert dans le domaine de Laplace s'écrit alors :

$$H(s) = \frac{I_D(s)}{V_E(s)} = \frac{1}{R_d + R_s + R_c} \times \frac{1 + (R_d C)s}{1 + \frac{R_s + R_c}{R_d + R_s + R_c} (R_d C)s} \quad \text{Eq. 3.2}$$

L'étape d'estimation consiste à trouver une fonction de transfert  $\tilde{H}(s)$  ayant la forme de  $H(s)$  et qui s'accorde (ou « fit ») le mieux avec les données expérimentales de tension et de courant. On recherchera donc  $\tilde{H}(s)$  sous la forme :

$$\tilde{H}(s) = K \times \frac{1 + \tau_1 s}{1 + \tau_2 s} \quad \text{Eq. 3.3}$$

Après validation du modèle  $\tilde{H}(s)$ , les paramètres,  $R_d C$ ,  $R_s$ ,  $R_c$  ainsi que le temps de réponse du modèle électrique seront ensuite déduits par rapprochement avec l'expression de  $H(s)$ , c'est à dire par résolution des équations :

$$R_d + R_s + R_c = \frac{1}{K} \quad \text{Eq. 3.4}$$

$$R_d C = \tau_1 \quad \text{Eq. 3.5}$$

$$\frac{R_s + R_c}{R_d + R_s + R_c} = \frac{\tau_2}{\tau_1} \quad \text{Eq. 3.6}$$

### 3.3.2. Quantification de l'émission lumineuse

#### 3.3.2.1. Principe de la mesure

Le système le mieux adapté à la mesure directe de la puissance lumineuse totale émise par une source lumineuse à très large ouverture numérique comme l'OLED utilise une sphère intégrante. Un tel système n'est malheureusement pas applicable à notre banc de mesure

en raison de son encombrement. Un autre moyen, moins adapté, mais bien plus simple consiste à éclairer, directement, ou au travers d'une optique de focalisation, une photodiode étalonée. C'est cette deuxième approche qui a été adoptée dans le cadre de ce travail.

Le système repose sur un détecteur de type photodiode à avalanche rapide (APD430A2/M de chez THORLABS) dont les caractéristiques sont données dans le *Tableau 3.3*.

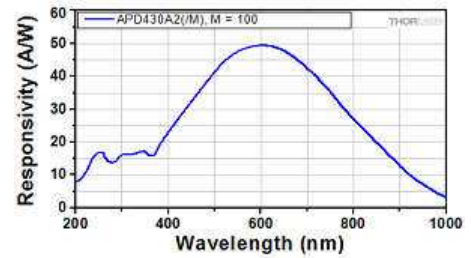
La lumière émise par l'OLED est couplée à la photodiode par une liaison optique. Comme le spectre d'émission de l'OLED est large (typiquement de l'ordre de 100 nm à mi-hauteur), le flux lumineux reçu  $\phi_{PDA}$  reçu par la photodiode est traduit en une tension électrique  $V_{PDA}$  – que nous avons appelée réponse optique, par pondération de sa réponse spectrale  $R_{PDA}(\lambda)$  (*Figure 3.1*), avec la distribution spectrale normalisée  $S_{OLED}(\lambda)$  d'émission de l'OLED.

$$V_{PDA} = G \times \left[ \int R_{PDA}(\lambda) S_{OLED}(\lambda) d\lambda \right] \phi_{PDA} \quad \text{Eq. 3.7}$$

où  $G$  est le gain de trans-impédance.

*Tableau 3.3 : Caractéristiques de la photodiode à avalanche [14]*

Item #	APD430A2/M
Detector Type	UV Enhanced Silicon APD
Wavelength Range	200 – 1000 nm
Output Bandwidth (3 dB)	DC – 400 MHz
Active Area Diameter	0.2 mm
Typical Max Responsivity	50 A/W @ 600 nm (M = 100)
Transimpedance Gain	5 kV/A with 50 $\Omega$ Termination
	10 kV/A with High-Impedance Termination
Max Conversion Gain	$5.0 \times 10^5$ V/W
M Factor Adjustment Range	10 – 100 (Continuous)



*Figure 3.21 : Courbe de sensibilité de la photodiode APD430A2/M [15]*

A partir de la mesure de  $V_{PDA}$ , effectuée en même temps que l'excitation électrique par un oscilloscope d'impédance d'entrée  $50\Omega$ , et de la relation Eq. 3.7, il est possible de remonter la chaîne de mesure optique jusqu'à la puissance effectivement émise par l'OLED. En effet, si on note  $\phi_{OLED}$  flux lumineux émis par l'OLED et  $\eta_{chaîne}$  le taux de couplage et de transmission de la chaîne de mesure, on peut écrire :

$$\phi_{PDA} = \eta_{ext} \times \eta_{chaîne} \times \phi_{OLED} \quad \text{Eq. 3.8}$$

Et en combinant cette relation avec la précédente, on arrive à :

$$\phi_{OLED} = \frac{1}{\eta_{ext}} \times \frac{1}{\eta_{chaîne}} \times \frac{1}{G \times \left[ \int R_{PDA}(\lambda) S_{OLED}(\lambda) d\lambda \right]} V_{PDA} \quad \text{Eq. 3.9}$$

Cette relation fournit le moyen d'estimer le flux lumineux  $\phi_{OLED}$  émis par l'OLED, à partir de la mesure de la tension délivrée par la photodiode  $V_{PDA}$ . Précisément, elle permet de

traduire une unité de tension mesurée en sortie de l'APD en unités de puissance émise à l'entrée de la ligne de mesure.

Il faut alors mesurer le spectre  $S_{OLED}(\lambda)$  de la source et estimer le facteur  $\eta_{chaîne}$  ou plus globalement le facteur de conversion  $K$  défini par :

$$K = \frac{1}{\eta_{ext}} \times \frac{1}{\eta_{chaîne}} \times \frac{1}{G \times \left[ \int R_{PDA}(\lambda) S_{OLED}(\lambda) d\lambda \right]} \quad \text{Eq. 3.10}$$

Ce sera l'objet des paragraphes §3.3.2.2 sur bilan énergétique de la chaîne et §3.3.2.3 sur son étalonnage.

### 3.3.2.2. Bilan énergétique de la chaîne de mesure

Compte tenu du matériel disponible, plusieurs configurations de chaîne de mesure optique ont été envisagées. Les différents schémas décomposés en bloc sont présentés sur la Figure 3.22.

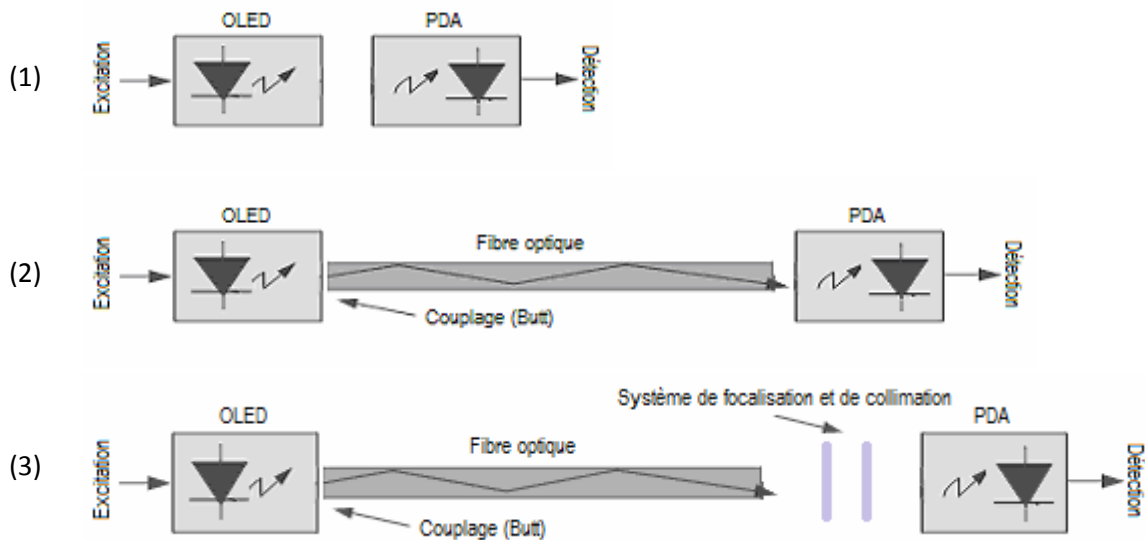


Figure 3.22 : Différents schémas de la chaîne de mesure optique

(a) couplage direct OLED / PDA, (b) couplage OLED / fibre / PDA, (c) couplage OLED / fibre / optique / PDA

Le schéma 1, qui tient de l'hypothèse d'école, correspond à un couplage direct OLED/photodiode. Le schéma 2 plus réaliste, utilise une fibre pour transmettre le signal lumineux de l'OLED à la photodiode. Le schéma 3 insère des optiques de focalisation entre la sortie de la fibre optique et la photodiode.

Il est question dans ce paragraphe d'estimer, par le calcul du facteur de transmission  $\eta_{chaîne}$ , le meilleur schéma de mesure, c'est-à-dire celui qui permet de détecter le maximum de lumière au niveau de la photodiode. Pour ce faire il faut identifier et estimer les pertes.

Du dipôle organique émetteur à la photodiode plusieurs mécanismes de pertes de la lumière sont à prendre en compte selon les schémas (couplage externe, couplage air, pertes de fresnel, pertes de propagation dans la fibre, couplage des optiques, ...).

### 3.3.2.2.1. Emission interne

L'émission interne de lumière dans une OLED est supposé isotrope, c'est-à-dire que les photons produits sont émis uniformément dans toutes les directions de l'espace avec la même intensité de rayonnement que nous noterons  $I_{int}$ .

Le flux lumineux total rayonné s'écrit alors :

$$\phi_{int} = \int_0^{2\pi} \int_0^{\pi} I_{int} \sin(\vartheta) d\vartheta d\varphi = 4\pi \times I_{int} \quad \text{Eq. 3.11}$$

### 3.3.2.2.2. Couplage externe (OLED / substrat / air)

Il est question ici d'estimer la fraction de lumière qui s'échappe de l'OLED pour l'extérieur. Le rayonnement lumineux produit par une OLED est émis à partir d'un milieu d'indice de réfraction élevé (typiquement avec  $n_{EL} = 1.7$ ), et doit traverser le substrat de verre (d'indice  $n_{verre} = 1.5$ ) pour atteindre l'extérieur (air d'indice  $n_{air} = 1$ ). En raison des effets de variation d'indice de réfraction, l'OLED se comporte comme un guide d'onde optique, piégeant ainsi une bonne partie de la lumière à l'intérieur (modes ITO, modes substrat, voir Figure 3.23) [11, 12].

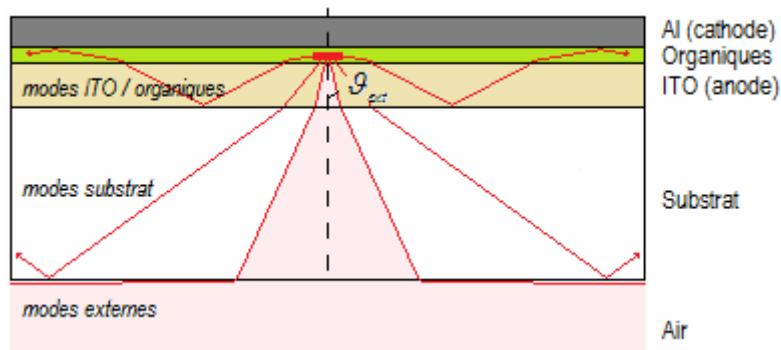


Figure 3.23 : Modes externes – couplage de la lumière vers l'extérieur

Les possibilités de couplage de la lumière vers l'extérieur se limitent à un cône d'échappement de demi-angle au sommet  $\vartheta_{ext}$  (voir zone en rose sur la figure), correspondant aux modes externes de l'OLED. Toute la lumière à l'extérieur de ce cône est piégée dans le substrat et les couches organiques. Il est question ici d'estimer théoriquement la proportion de puissance lumineuse contenu dans ce cône et qui par ailleurs correspond à la lumière qui s'échappe de la structure par la surface.

L'angle limite  $\vartheta_{ext}$  est donné par les lois de SNELL-DESCARTES :

$$n_{EL} \sin(\vartheta_{ext}) = 1 \quad \text{Eq. 3.12}$$

Si on note  $\Omega_{ext}$  l'angle solide de révolution autour du cône d'échappement délimité par l'angle  $\vartheta_{ext}$ , on peut définir l'efficacité de couplage extérieur comme la proportion de la puissance lumineuse totale interceptée par cet angle solide. On obtient alors :

$$\eta_{ext} = \frac{\phi_{ext}}{\phi_{int}} = \frac{\iint_{\Omega_{ext}} I_{int} \sin(\vartheta) d\vartheta d\varphi}{\iint_{2\pi} I_{int} \sin(\vartheta) d\vartheta d\varphi} = 1 - \cos(\vartheta_{ext}) = 1 - \sqrt{1 - \frac{1}{n_{EL}^2}} \quad \text{Eq. 3.13}$$

Application numérique : pour un indice du milieu d'émission  $n_{EL} = 1.7$  on trouve  $\eta_{ext} = 0.1913$ . Seulement 19.13% de la lumière émise est couplée à l'extérieure.

### 3.3.2.2.3. Pertes de Fresne

Elles correspondent aux pertes de réflexion partielle à chaque interface entre deux milieux diélectriques d'indice de réfraction différent, notamment à l'interface substrat / aire ou aux deux extrémités de la fibre (interfaces fibre / air et air / fibre). La proportion de lumière transmise à chacune des interfaces peut être estimée par le facteur de FRESNEL ci-après :

$$\eta_{FRESNEL} = 1 - \left( \frac{n_{verre} - 1}{n_{verre} + 1} \right)^2 \quad \text{Eq. 3.14}$$

Application numérique : Pour  $n = 1.5$ , on trouve  $\eta_{FRESNEL} = 0.96$ , soit 0.15dB

### 3.3.2.2.4. Schéma de mesure n° 1 : couplage direct OLED/photodiode

On suppose dans ce cas très simple que la lumière qui s'échappe de l'OLED est directement couplée au photodétecteur. Cette hypothèse d'école permet de fixer des ordres de grandeurs du couplage. Il est question d'estimer la proportion de lumière externe qui est couplée dans la photodiode.

L'angle solide, vue de la sortie de l'OLED, intercepté par la photodiode de section carré  $S_{PDA}$  et placée à une distance  $d$  du substrat est donnée par :

$$\Omega_{PDA/OLED} = 4 \sin^{-1} \left\{ \left[ 1 + \frac{4 \left( d + \frac{1}{n_{sub}} e \right)^2}{S_{PDA}} \right]^{-1} \right\} \quad \text{Eq. 3.15}$$

où  $n_{sub}$  est l'indice de réfraction du substrat.

Le taux de couplage dans la photodiode est alors donné par :

$$\eta_{chaîne1} = \eta_{PDA/OLED} = \min \left( 1, \frac{\Omega_{PDA/OLED}}{2\pi} \right) \times \min \left( 1, \frac{S_{PDA}}{S_{OLED}} \right) \quad \text{Eq. 3.16}$$

Application numérique :  $S_{PDA} = 200 \mu m \times 200 \mu m$ ,  $S_{OLED} = 150 \mu m \times 100 \mu m$ .

A une distance de travail d'environ  $1\text{cm}$ , estimation réelle de la distance minimale réalisable entre l'OLED et la photodiode si on est optimiste, ce taux couplage vaut  $\eta_{chaîne1} = 0.005\%$  !!!, soit  $-43\text{dB}$ .

### 3.3.2.2.5. Schéma de mesure n°2 : couplage OLED – fibre – photodiode

Dans cette hypothèse un peu plus réaliste, on suppose ici qu'une fraction de la lumière du cône d'échappement de l'OLED est collectée et amenée jusqu'au photodétecteur à travers une fibre optique de diamètre  $1000\mu\text{m}$  (ou  $600\mu\text{m}$ ) et d'ouverture numérique 0.5. L'entrée de la fibre est directement placée sous le substrat de verre (couplage de type Butt) tandis que l'autre extrémité pointe directement dans la photodiode.

#### Taux de couplage OLED / Fibre

Le flux lumineux couplé à l'intérieur de la fibre correspond à la fraction de flux lumineux externe interceptée par le cône d'acceptance de la fibre. En supposant la fibre parfaitement alignée avec l'OLED, cette puissance ne dépend que de l'ouverture numérique de la fibre et de sa distance par rapport à la source lumineuse.

#### *Effet de l'ouverture numérique de la fibre*

Pour une fibre optique d'ouverture numérique  $ON_{FO}$  disposée à l'avant de l'OLED et parfaitement alignée, un rayon lumineux ne rentre dans la fibre que si son incidence est contenu dans le cône d'ouverture de la fibre défini par le demi angle  $\vartheta_{FO}$ . Cela se traduit par :

$$\vartheta < \vartheta_{FO} = \sin^{-1}(ON_{FO}) \quad \text{Eq. 3.17}$$

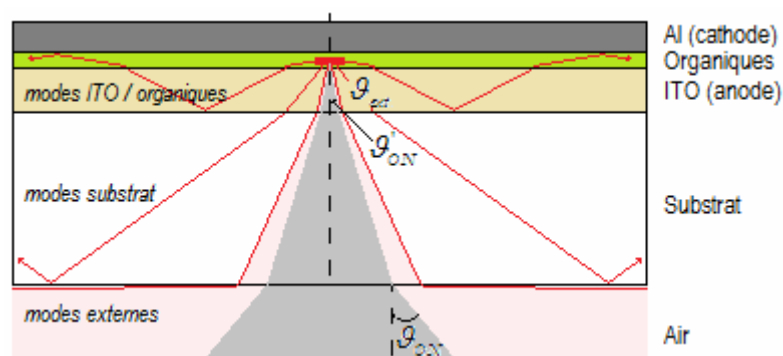


Figure 3.24 : Couplage direct de l'émission d'une OLED dans une fibre optique

*L'ouverture de la fibre de demi largeur  $\vartheta_{ON}$ , ramenée dans la couche d'émission par le principe de retour inverse de la lumière équivaut à une demi largeur  $\vartheta'_{ON}$*

Si par les lois de SNELL – DESCARTES on ramène cette limite d'ouverture de la fibre à l'intérieur de la couche d'émission (principe de retour inverse de la lumière), on trouve un angle équivalent  $\vartheta'_{ON}$  (voir partie en gris de la Figure 3.24), alors lié à la demi largeur  $\vartheta_{ON}$  du cône d'acceptance de la fibre par :

$$n_{EL} \sin(\mathcal{G}'_{ON}) = \sin(\mathcal{G}_{ON}) = ON_{FO} \quad \text{Eq. 3.18}$$

Un rayon lumineux ne rentrera dans le cône d'ouverture de la fibre que s'il quitte le milieu d'émission avec une incidence inférieure à  $\mathcal{G}'_{ON}$ . Si on note  $\Omega'_{ON}$  l'angle solide intercepté par le cône de révolution délimité par  $\mathcal{G}'_{ON}$ , on peut définir l'efficacité d'ouverture de couplage comme le rapport de la puissance lumineuse contenue dans cet angle solide à la puissance lumineuse totale émise. Il s'écrit alors :

$$\eta_{ON} = \frac{\iint_{\Omega'_{ON}} I_{int} \sin(\mathcal{G}) d\mathcal{G} d\varphi}{\iint_{2\pi} I_{int} \sin(\mathcal{G}) d\mathcal{G} d\varphi} = 1 - \cos(\mathcal{G}'_{ON}) = 1 - \sqrt{1 - \frac{ON_{FO}^2}{n_{EL}^2}} \quad \text{Eq. 3.19}$$

### Effet de la distance de collecte

Le calcul du paragraphe précédent tient compte seulement des effets de variation d'indice de réfraction ou d'angle limite entre le milieu émetteur et la fibre optique. Il suppose que la fibre soit suffisamment proche de la source lumineuse pour intercepter toute la lumière du cône d'acceptance. En pratique, il faut prendre en compte l'effet de dispersion dû à l'écart séparant la couche émissive du bout de la fibre car au-delà d'une certaine limite  $d_{max}$ , correspondant à l'écart pour lequel l'image de ce cône sur l'extrémité de la fibre commence à dépasser son diamètre, on perd de la lumière. Il est question ici de prendre en compte cette perte en évaluant l'effet de distance.

$$\eta_{disp} = \min \left( 1, \frac{\iint_{\Omega'_{lim}} I_{int} \sin(\mathcal{G}) d\mathcal{G} d\varphi}{\iint_{\Omega'_{ON}} I_{int} \sin(\mathcal{G}) d\mathcal{G} d\varphi} \right) = \min \left( 1, \frac{1 - \sqrt{1 - \frac{D_{FO}^2}{n_{EL}^2 \left( D_{FO}^2 + 4 \left( d + \frac{1}{n_{sub}} e \right)^2 \right)}}}{1 - \sqrt{1 - \frac{ON_{FO}^2}{n_{EL}^2}}} \right) \quad \text{Eq. 3.20}$$

où  $D_{FO}$  est le diamètre de la fibre,  $e$  et  $n_{sub}$  l'épaisseur du substrat et son indice de réfraction respectivement,  $d$  la distance substrat / fibre.

La distance limite doit permettre de satisfaire la condition  $\eta_{disp} = 1$ . On trouve alors :

$$d_{max} = \frac{D_{FO}}{2} \sqrt{\frac{1}{ON_{FO}^2} - 1} - \frac{e}{n_{sub}} \quad \text{Eq. 3.21}$$

### Taux de couplage global

Le taux de couplage global doit prendre en compte, les effets d'ouverture, de distance de collecte et de rapport de surface. Il est donné finalement par :

$$\eta_{OLED/FO} = \min \left\{ \eta_{ON}, 1 - \sqrt{1 - \frac{D_{FO}^2}{n_{EL}^2 \left[ D_{FO}^2 + 4 \left( d + \frac{1}{n_{sub}} e \right)^2 \right]}} \right\} \times \min \left( 1, \frac{\pi D_{FO}^2}{4 S_{OLED}} \right) \quad \text{Eq. 3.22}$$

où  $S_{OLED}$  est la surface de section de l'OLED.

Application numérique :  $e = 700\mu m$ ,  $S_{OLED} = 100\mu m \times 100\mu m$

Fibre		Distance substrat / fibre ( $d$ )				$d_{max}$
$ON_{FO}$	$D_{FO}$	0	$e/2$	$3e/4$	$e$	
0.50	600 $\mu m$	<b>0.0352</b>	0.0166	0.0117	0.0086	52.95 $\mu m$
0.50	1000 $\mu m$	0.0352	<b>0.0352</b>	0.0217	0.0093	399.36 $\mu m$

Le meilleur taux de couplage de la lumière dans chacune des fibres se situe autour de 3.5% de la puissance lumineuse totale émise, soit environ 18.4% de la lumière couplée à l'extérieur du substrat, avec en plus une forte contrainte sur le positionnement de la fibre qui doit être à 400 $\mu m$  du substrat pour la fibre de 1000 $\mu m$  contre 53 $\mu m$  pour la fibre de 600 $\mu m$ .

#### Taux de couplage fibre/photodiode

L'angle solide, vue de la sortie de la fibre, intercepté par la photodiode de section carré  $S_{PDA}$  et placée à une distance  $d$  de la fibre est donnée par :

$$\Omega_{PDA/FO} = 4 \sin^{-1} \left[ \left( 1 + \frac{4d^2}{S_{PDA}} \right)^{-1} \right] \quad \text{Eq. 3.23}$$

Le taux de couplage dans la photodiode est alors donné par :

$$\eta_{PDA} = \min \left( 1, \frac{\Omega_{PDA/FO}}{\Omega_{ON}} \right) \times \min \left( 1, \frac{4S_{PDA}}{\pi D_{FO}^2} \right) \quad \text{Eq. 3.24}$$

La distance limite de couplage maximal est la distance à partir de laquelle le cône de divergence de la fibre s'inscrit complètement dans la section du PDA. Elle est donnée par :

$$d_{max} = \frac{p/2}{\tan[\sin^{-1}(ON)]} \quad \text{Eq. 3.25}$$



Application numérique :  $S_{PDA} = p \times p = 200\mu m \times 200\mu m$

Fibre		Distance fibre / photodiode ( $d$ )				$d_{max}$
$ON_{FO}$	$D_{FO}$	0	$p$	$2p$	$5p$	
0.50	<200 $\mu m$	1	0.9568	0.2797	0.0470	173.2 $\mu m$
0.50	600 $\mu m$	0.1415	0.1354	0.0396	0.0067	
0.50	1000 $\mu m$	0.0509	0.0487	0.0142	0.0024	

### Pertes de propagation

L'atténuation linéique des câbles à fibre optique utilisés, M53L02 (600 $\mu m$ ) et M59L02 (1000 $\mu m$ ) de chez THORLABS, est estimées à 17.78dB/km [16], soit une atténuation totale de 0.1778dB sur 1m, ce qui correspond à un facteur de transmission de 99.59%.

### Bilan global

Dans le meilleur des cas, si on prend en compte tous les facteurs de pertes que nous venons d'énumérer, on arrive au bilan suivant :

Fibre		Taux de couplage / transmission				Distance de travail	
$ON_{FO}$	$D_{FO}$	Entrée fibre	Ligne	Sortie fibre	$\eta_{chaîne2}$	substrat	photodiode
0.50	600 $\mu m$	0.0338	0.9959	0.1358	<b>0.46%</b>	<b>52.95<math>\mu m</math></b>	<b>173.2<math>\mu m</math></b>
0.50	1000 $\mu m$	0.0338	0.9959	0.0489	<b>0.16%</b>	<b>399.36<math>\mu m</math></b>	<b>173.2<math>\mu m</math></b>

#### 3.3.2.2.6. Schémas de mesure 3 : couplage OLED – fibre – focalisation – photodiode

Dans le schéma de mesure n°3, la sortie de la fibre est couplée à la photodiode à travers une optique de focalisation. Cette configuration a pour but d'améliorer le taux de couplage en sortie de fibre et surtout de lever la difficulté liée à la très courte distance de travail obtenue dans les calculs précédents.

Le système de focalisation comprend :

- une lentille de distance focale  $f_1 (= 4.51mm)$  et d'ouverture numérique  $ON_1 (= 0.5)$  pour la collimation du faisceau provenant de l'OLED ;
- un objectif  $\times 50$  d'ouverture numérique  $ON_2 (= 0.25)$  et de focale équivalente  $f_2 (= 4mm)$  pour la focalisation du faisceau collimaté sur la photodiode.

Le diamètre de la tâche lumineuse finale au point focal de l'objectif et son ouverture s'écrivent alors :

$$\begin{cases} D_{FO}'' = D_{FO} \times \frac{f_2}{f_1} \\ ON_{FO}'' = ON_{FO} \times \frac{f_1}{f_2} \end{cases} \quad \text{Eq. 3.26}$$

Le diamètre  $D'_{FO}$  doit idéalement être inférieur au diamètre de la photodiode pour minimiser les pertes de couplage.

Le taux de couplage dans la photodiode est alors donné par :

$$\eta_{FO/PDA} = \min \left[ 1, \left( \frac{ON_1}{ON_{FO}} \right)^2 \right] \times \min \left[ 1, \frac{4S_{PDA}}{\pi D_{FO}^2} \left( \frac{f_1}{f_2} \right)^2 \right] \quad \text{Eq. 3.27}$$

Application numérique :  $f_1 = 13.86mm$  ,  $ON_1 = 0.18$  ,  $f_2 = 4mm$

Fibre		Taux de couplage à la photodiode
$ON_{FO}$	$D_{FO}$	
0.50	600 $\mu m$	<b>0.2201</b>
0.50	1000 $\mu m$	<b>0.0792</b>

### Bilan global

Dans le meilleur des cas, si on prend en compte tous les facteurs de pertes que nous venons d'énumérer, on arrive au bilan du tableau suivant :

Fibre		Taux de couplage / transmission			
$ON_{FO}$	$D_{FO}$	Entrée fibre	Ligne	$\eta_{FO/PDA}$	$\eta_{chaîne3}$
0.50	600 $\mu m$	0.0338	0.9959	<b>0.2113</b>	<b>0.42%</b>
0.50	1000 $\mu m$	0.0338	0.9959	<b>0.0760</b>	<b>0.26%</b>

### 3.3.2.2.7. Synthèse

Au terme de l'études des trois configurations de mesures décrites précédemment, celle qui couple le plus de lumière dans le détecteur est le schéma 2 (OLED / ligne à fibre optique / photodiode) avec la fibre de 600 $\mu m$  et taux de couplage  $\eta_{chaîne2} = 0.46\%$  . Cependant la distance de travail pour atteindre ce maximum de performance, 400 $\mu m$  de la photodiode, est difficilement réalisable en pratique. La configuration adoptée pour la suite sera donc le schéma 3 (OLED / ligne à fibre optique /optique de collimation / photodiode) avec la fibre de 600 $\mu m$  qui couple un peu moins avec  $\eta_{chaîne3} = 0.42\%$  , mais qui a l'avantage de permettre une distance de 40mm avec la photodiode.

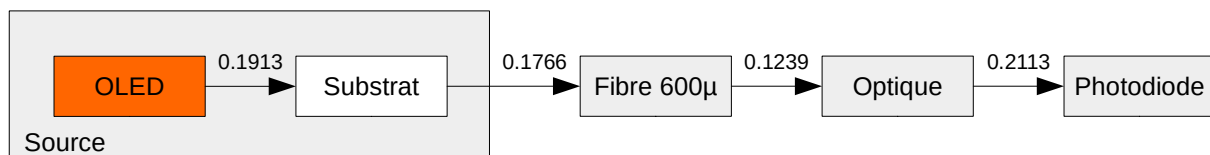


Figure 3.25 : Bilan des pertes sur la chaîne de mesure optique

### 3.3.2.3. Etalonnage de la chaîne de mesure

Le but de l'étalonnage de notre chaîne de mesure c'est d'être en mesure de convertir, par un facteur multiplicatif, les unités de tension mesurées en bout de chaîne de mesure en

unités de flux lumineux émis par l’OLED. Pour ce faire notre démarche d’étalonnage se déroule en plusieurs étapes :

- réalisation d’une source étalon et d’une boîte noire ;
- mesure de l’émission de la source étalon à travers la chaîne de mesure ; le résultat est une tension ;
- mesure de la puissance optique réelle de la source étalon en boîte noire et dans les mêmes condition d’excitation électrique ;
- calcul du facteur de conversion de la chaîne de mesure.

### 3.3.2.3.1. La source étalon et système de mesure calibrée

Elle est réalisée à partir d’une LED blanche ; pour se rapprocher au mieux du type de rayonnement d’une  $\mu$ -OLED, la LED a été insérée dans un tube noir contenant un diffuseur et mise en contact direct avec une fente de diamètre de 100 $\mu$ m.

Le système de détection calibré est constitué d’un photodétecteur calibré (New Port 918D-UV-OD3R) relié à un puissance-mètre (New Port 2935C) et d’une boîte noire (fait maison) dont les surfaces ont été traitées pour éliminer toute réflexion. Un spectromètre optique sert à mesurer le spectre d’émission de la source étalon.

### 3.3.2.3.2. Mesure de spectre et mesure en boîte noire

Dans un premier temps, la cellule étalon est alimentée par un générateur de tension continu tandis que son spectre est mesuré avec un spectromètre optique (Ocean Optics 2000 USB).

Pour la mesure de puissance, source étalon et photodétecteur sont placés en boîte noire à une distance de séparation connue  $d$ , voir *Figure 3.1*, de manière à ce que sa surface du détecteur soit perpendiculaire à l’axe de la source. On admet par ailleurs l’hypothèse que la cellule est vue par la photodiode comme une source ponctuelle. La fraction de lumière de la source qu’intercepte le détecteur est donnée par le rapport de l’angle solide intercepté à l’angle solide  $2\pi$  du demi-espace d’émission de la source étalon. Si on note  $r$  le rayon du photo détecteur, on trouve :

$$\eta_{\text{étalon / PD}} = 1 - \frac{d}{\sqrt{d^2 + r^2}} \quad \text{Eq. 3.28}$$

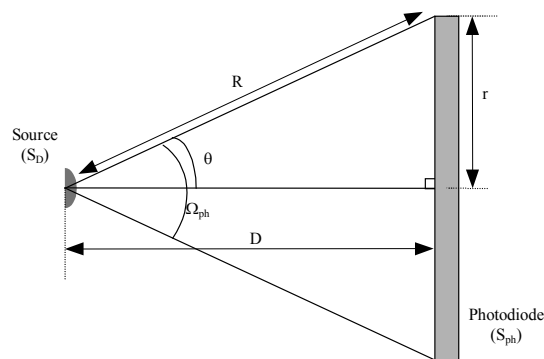


Figure 3.26 : Disposition de la source étalon et du photodétecteur en boîte noire

La cellule étalon est alimentée par un générateur de tension. Le puissance-mètre optique est relié au photodétecteur calibré, et réglé par l'utilisateur sur la longueur d'onde de mesure  $\lambda_0$ , qui doit correspondre idéalement au pic d'émission de la source. Il mesure et affiche une puissance optique énergétique  $\phi_{\text{affiché}}$  (unité watt) en considérant que la lumière émise est monochromatique.

Comme l'étalon n'est en réalité pas monochromatique, il faut appliquer un facteur de correction qui prenne en compte à la fois le spectre d'émission de la source et la réponse spectrale du détecteur pour retrouver le flux  $\phi_{\text{réel}}$  réellement reçu par le photodétecteur (relation Eq. 3.29).

$$\phi_{\text{réel}} = \frac{R_{\text{PD}}(\lambda_0) \int S_{\text{étalon}}(\lambda) d\lambda}{\int S_{\text{étalon}}(\lambda) R(\lambda) d\lambda} \times \phi_{\text{affiché}} \quad \text{Eq. 3.29}$$

$R_{\text{PD}}(\lambda)$  est la réponse spectrale du photodétecteur,  $S_{\text{étalon}}(\lambda)$  le spectre d'émission de la source étalon.

La relation avec le flux total émis par la cellule étalon, en prenant en compte l'angle solide intercepté par le photodétecteur est alors donné par :

$$\phi_{\text{étalon}} = \frac{1}{\eta_{\text{étalon / PD}}} \times \frac{R_{\text{PD}}(\lambda_0) \int S_{\text{étalon}}(\lambda) d\lambda}{\int S_{\text{étalon}}(\lambda) R_{\text{PD}}(\lambda) d\lambda} \times \phi_{\text{affiché}} \quad \text{Eq. 3.30}$$

Cette relation permet d'estimer la puissance réelle de la source étalon à partir de la puissance affichée. Au terme de cette étape, la puissance de la source est donc connue.

### 3.3.2.3.3. Mesure sur la chaîne de mesure optique

La cellule étalon est placée cette fois sur notre chaîne de mesure optique à la position occupée par l'OLED et alimenté dans les mêmes conditions que précédemment. La réponse mesurée en bout de chaîne est la tension  $V_{\text{PDA / étalon}}$  délivrée par la photodiode à avalanche et mesurable à l'oscilloscope. Elle est liée à la puissance totale de la source étalon par une relation analogue à Eq. 3.9.

$$\phi_{\text{étalon}} = \frac{1}{\eta_{\text{chaîne}}} \times \frac{1}{G \times \left[ \int R_{\text{PDA}}(\lambda) S_{\text{étalon}}(\lambda) d\lambda \right]} V_{\text{PDA / étalon}} \quad \text{Eq. 3.31}$$

### 3.3.2.3.4. Synthèse et application numérique

Si on combine les relations Eq. 3.31, Eq. 3.30 et Eq. 3.9, on arrive à :

$$K = \frac{1}{\eta_{\text{ext}}} \times \frac{\int R_{\text{PDA}}(\lambda) S_{\text{étalon}}(\lambda) d\lambda}{\int R_{\text{PDA}}(\lambda) S_{\text{OLED}}(\lambda) d\lambda} \times \frac{R_{\text{PD}}(\lambda_0) \int S_{\text{étalon}}(\lambda) d\lambda}{\int S_{\text{étalon}}(\lambda) R_{\text{PD}}(\lambda) d\lambda} \times \frac{1}{\eta_{\text{étalon / PD}}} \times \frac{\phi_{\text{affiché}}}{V_{\text{PDA / étalon}}} \quad \text{Eq. 3.32}$$

Application numérique :  $r = 5.65\text{mm}$ ,  $\lambda_0 = 532\text{nm}$ .

	$d = 106.2\text{mm}$	$d = 116.2\text{mm}$	$d = 122.2\text{mm}$	$d = 134\text{mm}$
$1/\eta_{\text{étalon/PD}}$	708.11	847.45	937.07	1129.83
$\phi_{\text{affichée}}$	445.82nW	344.28nW	287.04nW	240.74nW
$R_{PD}(\lambda_0) \int S_{\text{étalon}}(\lambda) d\lambda$	2.72			
$\int S_{\text{étalon}}(\lambda) R_{PD}(\lambda) d\lambda$	87			
$\int R_{PDA}(\lambda) S_{\text{étalon}}(\lambda) d\lambda$	4940.07			
$\int R_{PDA}(\lambda) S_{\text{OLED}}(\lambda) d\lambda$	4118.5			
$V_{PDA/\text{étalon}}$	285mV			
$K(W/mV)$	$1.17 \times 10^{-7}$	$1.07 \times 10^{-7}$	$0.99 \times 10^{-7}$	$1.00 \times 10^{-7}$

En conclusion, le coefficient de conversion de la tension de sortie du PDA en unité de puissance est estimé en moyenne à  $(106 \pm 11) \times nW/mV$ .

## CONCLUSION

Dans ce chapitre, nous avons décrit les étapes du processus de fabrication et de conditionnement de nos OLEDs et les méthodes et moyens de leur caractérisation.

Nous disposons de deux jeux d'échantillons faits de  $\mu$ -OLED rapides de différentes dimensions déposées sur des électrodes structurées sous la forme de lignes coplanaires dont certaines sont métallisées, ainsi que de moyens de caractérisation mis en œuvre aussi bien en régime continu qu'en régime d'impulsion. Ceci doit permettre d'atteindre trois objectifs :

- caractériser et comparer les échantillons afin d'extraire les paramètres électriques nécessaires à l'implémentation du modèle électrique ;
- mesurer les réponses temporelles électrique et optique et quantifier les constantes de temps ;
- mesurer les densités de courants et les densités de photons crêtes afin de les comparer aux seuils laser rappeler en introduction.

Les différentes mesures nécessaires pour atteindre ces objectifs sont présentées dans le prochain chapitre.

## REFFÉRENCES

---

1. L. Zeng, Étude théorique et expérimentale de  $\mu$ -OLED en régime impulsionnel à très haute densité de courant, Thèse de Doctorat, Université Paris 13, 2016.
2. T. M. Brown, R. H. Friend, I. S. Millard, D. J. Lacey, J. H. Burroughes, et F. Cacialli, «LiF/Al cathodes and the effect of LiF thickness on the device characteristics and built-in potential of polymer light-emitting diodes », *Applied Physics Letters*, vol. 77, n° 19, pp. 3096–3098, 2000.
3. S. Y. Park, C. H. Lee, W. J. Song, and C. Seoul, Enhanced electron injection in organic light-emitting devices using Al/LiF electrodes, *Curr. Appl. Phys.* vol. 1, n° 1, pp. 116–120, 2001.
4. H. Aziz, Z.D. Popovic, N.X. Hu, A.M. Hor, G. Xu, Degradation mechanism of small molecule-based organic light-emitting devices, *Science* 283, 1900, 1999.
5. J. Shen et al., « Degradation mechanisms in organic light emitting diodes », *Synthetic metals*, vol. 111, pp. 233–236, 2000.
6. S. T. Lee, Z. Q. Gao, et L. S. Hung, « Metal diffusion from electrodes in organic light-emitting diodes », *Applied Physics Letters*, vol. 75, n° 10, pp. 1404–1406, 1999.
7. S. F. Lim, W. Wang, et S. J. Chua, « Degradation of organic light-emitting devices due to formation and growth of dark spots », *Materials Science and Engineering: B*, vol. 85, n° 2, pp. 154–159, 2001.
8. M. Schaer, F. Nuesch, D. Berner, W. Leo, L. Zuppiroli, Water vapor and oxygen degradation mechanisms in Organic Light Emitting Diode, *Adv. Funct. Mater.* 11, 116, 2001.
9. Y. Hamada, C. Adachi, T. Tsutsui, S. Saito, Blue-Light-Emitting Organic Electroluminescent Devices with Oxadiazole Dimer Dyes as an Emitter, *Jpn. J. Appl. Phys.* vol 31, pp. 1812–1816, 1992.
10. N. Grossiord, J. M. Kroon, R. Andriessen, et P. W. M. Blom, « Degradation mechanisms in organic photovoltaic devices », *Organic Electronics*, vol. 13, n° 3, pp. 432–456, 2012.
11. K. Saxena, V. K. Jain, et D. S. Mehta, « A review on the light extraction techniques in organic electroluminescent devices », *Optical Materials*, vol. 32, n° 1, pp. 221–233, 2009.
12. S. R. Forrest, D. D. C. Bradley, and M. E. Thompson, “Measuring the Efficiency of Organic Light-Emitting Devices,” *Advanced Materials*, vol. 15, n° 13, pp. 1043–1048, Jul. 2003.
13. D. Chinarro, « System Identification Techniques », in *System Engineering Applied to Fuenmayor Karst Aquifer (San Julián de Banzo, Huesca) and Collins Glacier (King George Island, Antarctica)*, Cham: Springer International Publishing, pp. 11–51, 2014.
14. THORLABS, [https://www.thorlabs.com/newgrouppage9.cfm?objectgroup\\_id=6686&pn=APD130A2/M](https://www.thorlabs.com/newgrouppage9.cfm?objectgroup_id=6686&pn=APD130A2/M), juillet 2017
15. THORLABS, [https://www.thorlabs.com/images/TabImages/APD430A\\_APD410A\\_Responsivity\\_500.gif](https://www.thorlabs.com/images/TabImages/APD430A_APD410A_Responsivity_500.gif), juillet 2017
16. THORLABS, [https://www.thorlabs.com/images/TabImages/Hard\\_Clad\\_Silica\\_050\\_LowOH\\_780.gif](https://www.thorlabs.com/images/TabImages/Hard_Clad_Silica_050_LowOH_780.gif), juillet 2017

## 4. RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX ET DISCUSSIONS

### SOMMAIRE

---

INTRODUCTION .....	97
4.1. LA DEMARCHE SCIENTIFIQUE.....	97
4.2. DESCRIPTIFS DES ECHANTILLONS REALISES .....	98
4.3. QUALIFICATION DES ECHANTILLONS .....	99
4.3.1. Mesure à l'analyseur de réseau .....	99
4.3.1.1. <i>Impédance caractéristique des lignes réalisées</i> .....	100
4.3.1.2. <i>Définition des plans de mesures d'impédances</i> .....	100
4.3.1.3. <i>Résistance de charge intégrée</i> .....	101
4.3.1.4. <i>Résistance série : contribution de la zone d'évidement autour de l'anode</i> .....	103
4.3.1.5. <i>Capacité et résistance série (OLED + circuit)</i> .....	104
4.3.2. Caractérisation d'OLED en régime continu : courbe IVL et spectre .....	105
4.4. REPONSE ELECTRIQUE ET OPTIQUE EN REGIME D'IMPULSIONS.....	107
4.4.1. Influence de la durée des impulsions .....	107
4.4.2. Influence de l'amplitude des impulsions d'excitation .....	108
4.4.3. Spectre optique résolu en temps.....	111
4.5. VALIDATION DU MODELE .....	112
4.5.1. Extrapolation de la résistance dynamique à faible tension.....	113
4.5.2. Extrapolation de la résistance dynamique en régime d'impulsion .....	114
4.5.3. Extraction du modèle électrique par identification « fit ».....	116
4.5.4. Comparaison des 3 approches .....	116
4.5.5. Ajustement du modèle électrique .....	117
4.5.6. Densités de courant crêtes et intensités lumineuses crêtes.....	120
4.5.7. Rendement quantique instantané.....	121
CONCLUSION .....	122
REFERENCES .....	125

---





## INTRODUCTION

Ce dernier chapitre est consacré à la présentation des résultats obtenus et leurs analyses. Pour rappel, l'objectif est de fabriquer des OLEDs avec deux contraintes. Elles doivent accepter des densités de courant d'excitation électrique de quelques  $kA/cm^2$  suffisamment élevées pour atteindre des valeurs équivalentes aux seuils laser observés en pompage optique. De plus, en raison des effets d'annihilation singulet-triplet, il est nécessaire que les impulsions d'excitation soient les plus courtes possibles, idéalement en dessous de la dizaine de nanoseconde.

Au cas où il ne serait pas possible d'atteindre directement un niveau d'excitation équivalent au seuil laser, il paraît important d'identifier des mécanismes physiques qui permettraient d'accroître cette excitation. Pour cette raison, nous nous intéresserons à l'évolution des pics de luminescence en fonction du temps de montée de la réponse électrique pour comprendre comment il évolue avec le temps de réponse.

Nous avons vu dès l'introduction que le rendement quantique joue un rôle important dans l'évaluation de la densité de courant au seuil laser, c'est pourquoi nous évaluerons également le rendement quantique en régime continu et le rendement quantique instantané en régime d'impulsion.

### 4.1. LA DEMARCHE SCIENTIFIQUE

La démarche scientifique que nous mettons en œuvre pour apporter des éléments de réponse à ces questions consiste tout d'abord à nous assurer que les échantillons fabriqués sont conformes en vérifiant leurs propriétés électriques et optiques notamment en régime permanent ou par analyse multifréquence. Il s'agit de vérifier notamment :

- que les lignes CPW présentent bien une impédance caractéristique de  $50\Omega$  ;
- que les résistances intégrées présentent bien les valeurs attendues sachant qu'elles ont été calculées pour faire  $11\Omega$  ;
- que l'hétérostructure organique réalisée permet bien une émission lumineuse avec les efficacités et rendements attendus.

Une fois les composants validés, leurs réponses électriques et optiques en régime impulsionnel pourront être étudiées :

- pour différentes durées d'impulsions, ce qui doit donner une première réponse sur leur rapidité ;
- en augmentant les amplitudes des impulsions d'excitation afin d'estimer les densités de courant crête auxquelles elles peuvent être soumises ;
- en analysant leur réponse spectrale optique résolue en temps ;

- les réponses électriques et optiques pourront également donner accès aux temps de montée.

Pour accéder au courant effectif traversant l'hétérostructure organique et participant à l'émission lumineuse, il est nécessaire selon le modèle électrique qui reste à valider, d'estimer aussi précisément que possible la résistance dynamique dont la mesure nécessite à son tour de connaître la caractéristique courant – tension de l'OLED ; cette imbrication constitue une difficulté qui implique de mettre en œuvre différentes approches. Une première approche consiste à l'extrapoler à partir de la caractéristique courant-tension mesurée en régime continu. La résistance dynamique peut aussi être extraite à partir des caractéristiques I(V) établies à partir de réponses électriques en régime d'impulsion. Elle peut également être estimée à partir d'un rapprochement entre les données expérimentales et le modèle électrique.

A l'issue de cette démarche en 3 étapes, il sera sans doute alors possible d'estimer les paramètres clefs indispensables pour conclure sur la possibilité d'atteindre l'effet laser en pompage électrique.

- les densités de courant crêtes ;
- les densités d'excitation optiques
- les rendements quantiques moyennés sur une impulsion ou instantanés

#### 4.2. DESCRIPTIFS DES ECHANTILLONS REALISES

Plusieurs échantillons de diverses tailles ont été fabriqués. Certains sur substrats non métallisés, d'autres sur substrats métallisés. Partant de substrats de verre initialement recouvert d'ITO, la première phase de réalisation a consisté à structurer à leurs surfaces des électrodes sous forme de lignes CPW avec un dimensionnement permettant d'assurer une continuité d'impédance avec la source d'excitation et sa connectique. Des résistances de charge (ou de mesure) y ont concomitamment été intégrées pour le contrôle (ou la mesure) du courant.

Ensuite, les premiers échantillons ont été réalisés directement sur substrat d'ITO. Ils ont fait l'objet de mesures de caractérisation classique, et par la suite il a fallu faire face à plusieurs difficultés :

- la nécessité de recourir aux amplitudes de tension d'excitation trop élevées pour faire fonctionner les OLEDs en régime des impulsions (jusqu'à 120V) ;
- les fortes chutes de tension dans le circuit, certainement dues à des résistances de piste élevées ;

- l'impossibilité de réaliser des mesures fiables d'impédances avec un analyseur de réseau vectoriel ; en raison des impédances trop élevées probablement, une fois de plus, à cause de fortes résistances sur les lignes réalisées.

Ces difficultés nous ont amenés vers l'idée de la métallisation du substrat d'ITO, notamment pour réduire les résistances des pistes et espérer arriver à mieux sonder nos échantillons par des mesures d'impédances. D'où une deuxième génération d'échantillons réalisés sur substrats d'ITO métallisés par une surcouche Chrome/Or.

Différentes tailles d'OLEDs ont été réalisées dans chacun des cas, en variant la largeur de l'anode d'ITO soit  $25\mu m$ ,  $50\mu m$  ou  $100\mu m$ , tandis que celle de la cathode d'aluminium est restée fixe à  $150\mu m$ .

Dans la suite nous allons adopter les identifications du *Tableau 4.1* pour divers types d'échantillons étudiés.

*Tableau 4.1 : Identification des échantillons*

	Taille ( $\mu m^2$ )		
	100x150	50x150	25x150
<i>Substrat structuré sans métallisation</i>	sub1a	sub1b	sub1c
<i>Substrat structuré avec métallisation</i>	sub2a	sub2b	sub2c
<i>Substrat structuré sans métallisation en court-circuit</i>	cc1a	cc1b	cc1c
<i>Substrat structuré avec métallisation en court-circuit</i>	cc2a	cc2b	cc2c
<i>OLED sur substrat non métallisé</i>	ech1a	ech1b	ech1c
<i>OLED sur substrat métallisé</i>	ech2a	ech2b	ech2c

### 4.3. QUALIFICATION DES ECHANTILLONS

Après fabrication, les échantillons sont caractérisés en deux grandes étapes ; tout d'abord une validation à l'analyseur de réseau vectoriel de l'impédance caractéristique, la mesure de la résistance de charge et de la capacité (§4.3.1), et ensuite la vérification en régime continu des propriétés électrique et optique des OLEDs (§4.3.2).

#### 4.3.1. Mesure à l'analyseur de réseau

Tant pour la vérification de l'impédance caractéristique des lignes structurées et que pour les mesures des résistances de charges réalisées dans l'ITO, nous avons effectué des mesures de coefficients de réflexion en configuration 1-port (mesures de paramètre S11), avant de les convertir par calcul en mesures d'impédances.

Avant toute mesure, une première étape a consisté à calibrer l'analyseur, le but étant de prendre en compte les éventuelles erreurs de mesures dues aux sondes et aux câbles. Pour ce faire l'analyseur de réseau a été calibré au plan des pointes. La technique de calibration SOLT (SHORT – OPEN – LOAD – THRU), basée sur l'utilisation de quatre standards de

calibration parfaitement connue, a été utilisée avec une restriction aux trois standards SHORT – OPEN – LOAD (suffisants pour les mesures en réflexion).

#### 4.3.1.1. Impédance caractéristique des lignes réalisées

Le dispositif de mesure ici est un échantillon spécifique métallisé ne contenant qu'une seule ligne CPW de  $7.5\text{mm}$  de long, terminée sur une charge résistive de  $50\Omega$  et ayant les mêmes dimensions  $W$  et  $G$  que les électrodes de nos OLEDs. La mesure effectuée à l'autre extrémité de la ligne, et représentée sur la *Figure 4.1a* montre un nuage de points au centre de l'abaque de Smith. La trace de son module sur la *Figure 4.1b* révèle un coefficient de réflexion (ou paramètre  $S_{11}$ ) très faible ( $< -40\text{dB}$ ).

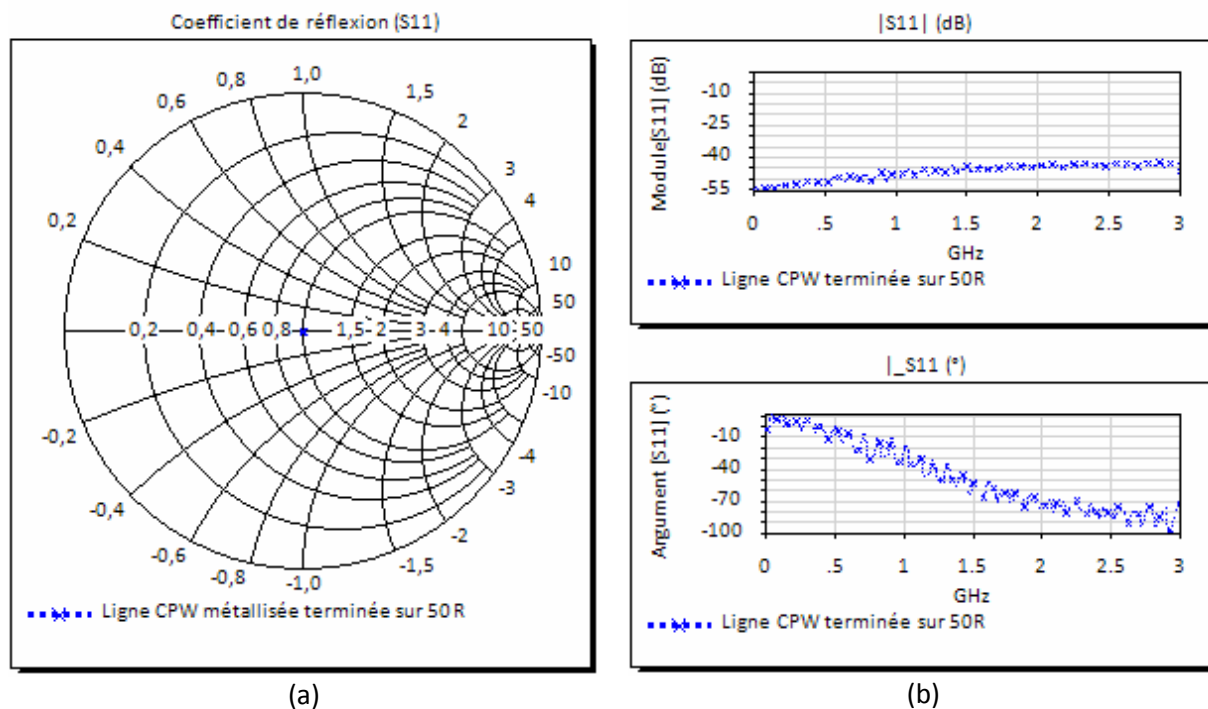


Figure 4.1 : Mesures du coefficient de réflexion sur une ligne CPW terminée sur une résistance de  $50\Omega$ . Idéalement, la réflexion doit être nulle pour une ligne d'impédance caractéristique  $50\Omega$ . En comparaison avec nos mesures, nous pouvons valider que les lignes de nos électrodes réalisent bien une impédance caractéristique de  $50\Omega$ .

#### 4.3.1.2. Définition des plans de mesures d'impédances

Plusieurs plans de mesures ont été choisis comme illustrés sur la *Figure 4.2* :

- aux bornes de la résistance de charge intégrée (plan *A*, plan *B*) ;
- à l'entrée du circuit lorsque anode et cathode sont en court-circuit (plan *C*).

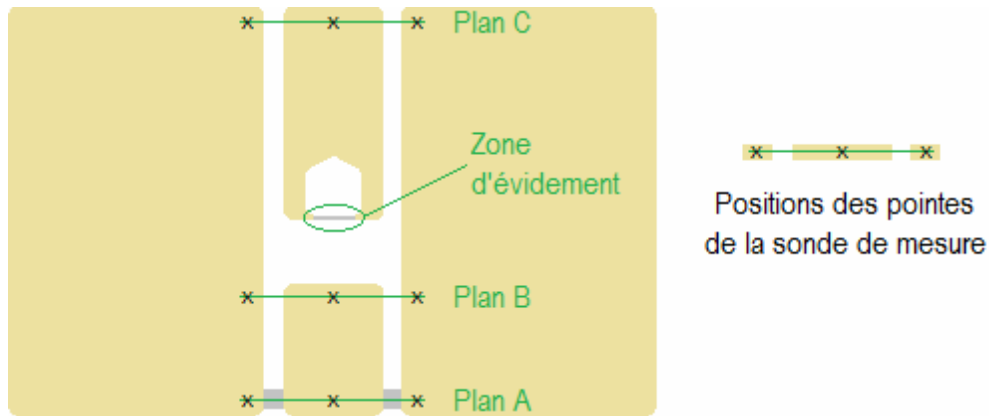


Figure 4.2 : Plans de mesures d'impédances

La mesure d'impédance au plan *A* permet d'estimer la valeur de la résistance de charge. Au plan *B*, elle a pour but d'apprécier l'effet de la ligne sur la résistance globale de l'électrode, par comparaison avec la mesure obtenue au plan *A*. La mesure au plan *C* est effectuée lorsque cathode et anode sont en court-circuit ; combinée avec les mesures aux plans *A* et *B*, elle permet d'estimer la contribution des lignes et surtout de la zone d'évidement dans la résistance série totale du circuit réalisé.

#### 4.3.1.3. Résistance de charge intégrée

Sur la *Figure 4.3a* sont représentées dans le diagramme de SMITH les mesures de coefficient de réflexion effectuées dans les cas de substrats non métallisés. La mesure est effectuée directement aux bornes de la résistance de charge intégrée (Plan *A*) et un peu plus loin à l'autre bout de ligne (Plan *B*)  $1.5\text{mm}$ . Chaque nuage de points sur le graphe représente les variations du coefficient de réflexion de la charge en fonction de la fréquence. Sur la *Figure 4.3b* sont représentées, dans des repères rectangulaires, les mêmes mesures converties en impédance et représentées en partie réelle (résistance) et partie imaginaire (réactance). L'impédance mesurée au Plan *A* est assimilable à une charge purement résistive et dépend peu de la fréquence. Sa valeur se situe autour de  $35.85\Omega$ , bien loin de la valeur réellement dimensionnée que l'on a estimée à  $11\Omega$ . Lorsque les pointes de la sonde de mesure sont positionnées au plan *B*, on observe une augmentation de la résistance qui passe à  $51.49\Omega$  et l'apparition d'une composante réactive inductive allant jusqu'à  $10.40\Omega$  pour les hautes fréquences. Ces écarts d'impédances observés par rapport aux prévisions de dimensionnement d'une part et d'autre part avec la position des pointes et la composante réactive peuvent évidemment se justifier par le caractère « mauvais conducteur » du film d'ITO qui entraîne des pertes ohmiques dans les conducteurs.

Les mêmes mesures sont réalisées dans le cas d'échantillons métallisés par une surcouche de Chrome/Or, *Figure 4.4*. Dans ces cas l'impédance est également assimilable à une charge purement résistive. La résistance mesurée dépend peu de la fréquence et reste la même dans les deux plans ; elle vaut  $13.60\Omega$ , soit  $23.6\%$  de plus que la valeur dimensionnée de

11 $\Omega$ . La réactance quant à elle est négligeable avec des fluctuations de faibles amplitudes entre  $\pm 1\Omega$  autour de zéro.

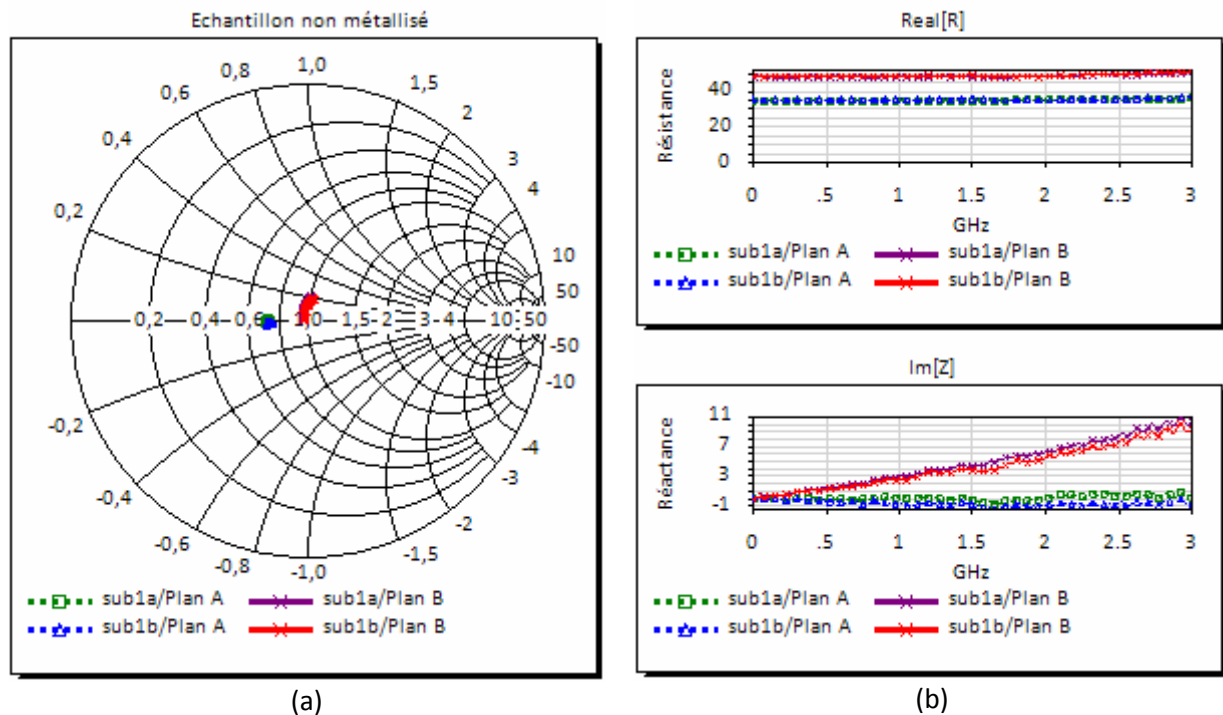


Figure 4.3 : Mesures de la résistance de charge sur substrat non métallisé

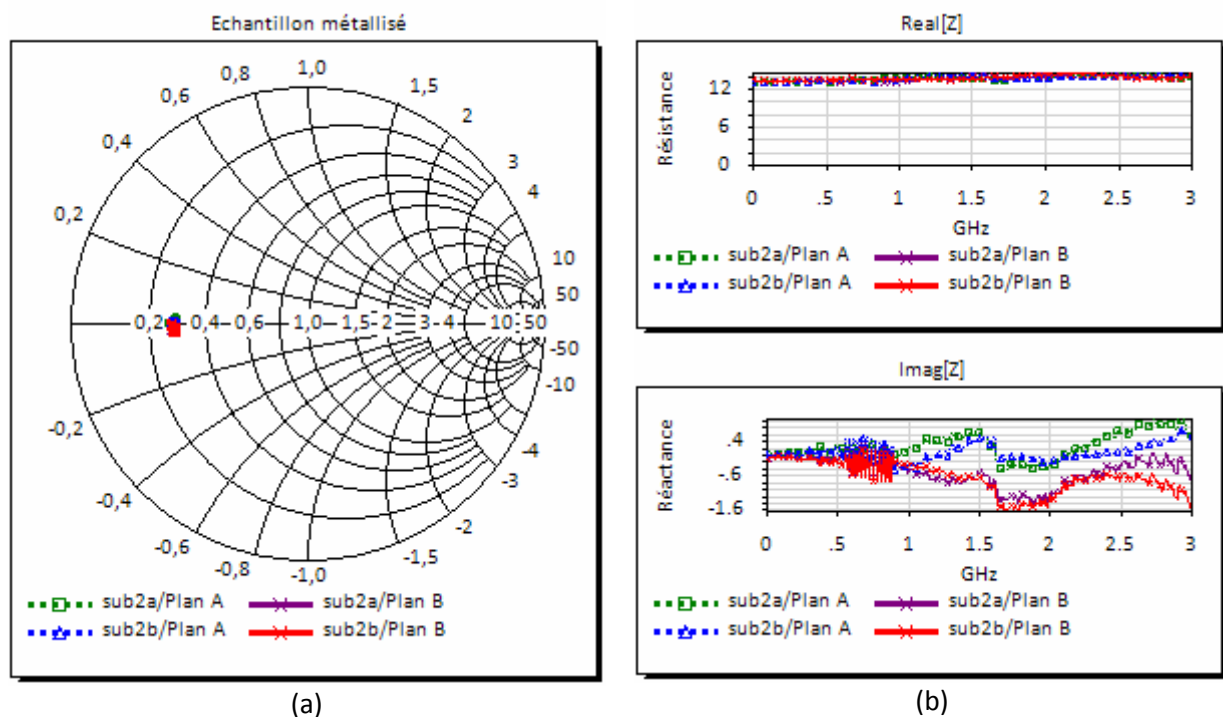


Figure 4.4 : Mesures de la résistance de charge sur substrat métallisé

On peut conclure de ces observations que la métallisation réduit l'effet résistif des lignes du circuit d'excitation, qu'elle diminue la marge d'erreur entre les prévisions théoriques de

conception et valeurs de résistance réalisée, et qu'elle est surtout indispensable si on veut contrôler rigoureusement le circuit d'excitation (ou de mesure).

#### 4.3.1.4. Résistance série : contribution de la zone d'évidement autour de l'anode

Pour estimer la contribution de la zone d'évidement dans la résistance série, les mesures d'impédance similaires à celles du paragraphe précédents sont effectuées à l'entrée du circuit d'excitation sur le substrat métallisé, c'est-à-dire au plan  $C$  sur la Figure 4.2, lorsque l'anode et la cathode sont en contact direct de court circuit. Pour réaliser ce contact, nous avons évaporé la cathode directement sur le substrat structuré en omettant l'étape de dépôt des couches organiques. Trois groupes d'échantillons se différenciant par la largeur de leurs anodes sont étudiés dans ce cas.

Les résultats des mesures sont donnés sur la Figure 4.5. Pour les fréquences basses, la résistance en bout de ligne est estimée à  $34.75\Omega$ ,  $52.04\Omega$  et  $103.85\Omega$  pour les échantillons de largeur d'anode  $100\mu m$ ,  $50\mu m$  et  $25\mu m$  respectivement. Si on soustrait la résistance de charge estimée précédemment à  $13.60\Omega$ , on obtient des valeurs de résistance (voir Figure 4.5) qui correspondent essentiellement à la zone d'évidement car la métallisation partout ailleurs permet d'annihiler la contribution des pistes.

Les écarts observés entre mesures et estimations théoriques peuvent s'expliquer par un excentrement de la position de la cathode sur l'anse de panier. En effet la valeur théorique de la résistance  $R_s$  induite par l'anode est maximale lorsque la cathode est parfaitement centrée sur l'anode ; elle peut être quasiment nulle en cas d'excentrement maximal.

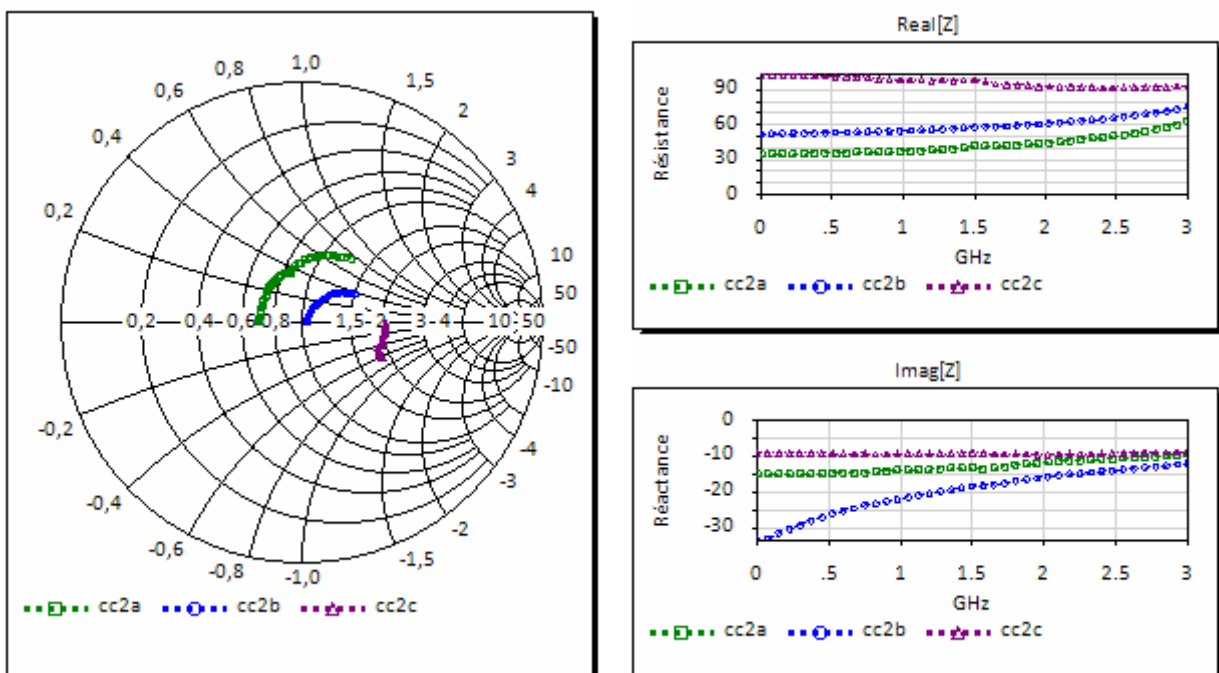


Figure 4.5 : Mesures de résistance des lignes et contribution de la zone d'évidement

On notera au passage un comportement inductif correspondant à une inductance estimée en moyenne à  $1.85nH$  qui peut s'expliquer par la rupture d'impédance de ligne au niveau de la zone d'évidement. Quant à l'augmentation de la résistance avec la fréquence, elle peut être attribuée à l'effet de peau.

Tableau 4.2 : Estimation de la résistance série de l'anode

	Echantillons		
	cc2a (100 $\mu$ m)	cc2b (50 $\mu$ m)	cc2c (25 $\mu$ m)
Résistance série totale $R_C + R_s$ (mesurée)	34.75 $\Omega$	52.04 $\Omega$	103.85 $\Omega$
Résistance de l'anode $R_s$ (déduite de la mesure)	21.15 $\Omega$	38.44 $\Omega$	90.25 $\Omega$
Résistance de l'anode $R_s$ (estimation théorique)	0 $\rightarrow$ 24.38 $\Omega$	0 $\rightarrow$ 48.75 $\Omega$	0 $\rightarrow$ 97.50 $\Omega$

#### 4.3.1.5. Capacité et résistance série (OLED + circuit)

Rappelons avant toute chose que, vu des bornes d'excitation, l'ensemble formé de l'OLED proprement dite et de son circuit d'excitation peut être assimilé à un dipôle passif. Les mesures sont effectuées pour des OLEDs de différentes tailles déposées sur substrats métallisés. Les dimensions réalisées sont  $100\mu\text{m} \times 150\mu\text{m}$ ,  $50\mu\text{m} \times 150\mu\text{m}$  et  $25\mu\text{m} \times 150\mu\text{m}$ . La variabilité porte sur la largeur de l'anode d'ITO, soit  $25\mu\text{m}$ ,  $50\mu\text{m}$  ou  $100\mu\text{m}$  tandis que celle de la cathode d'aluminium est fixe et vaut  $150\mu\text{m}$ . La grandeur mesurée est le coefficient de réflexion (ou paramètre S11).

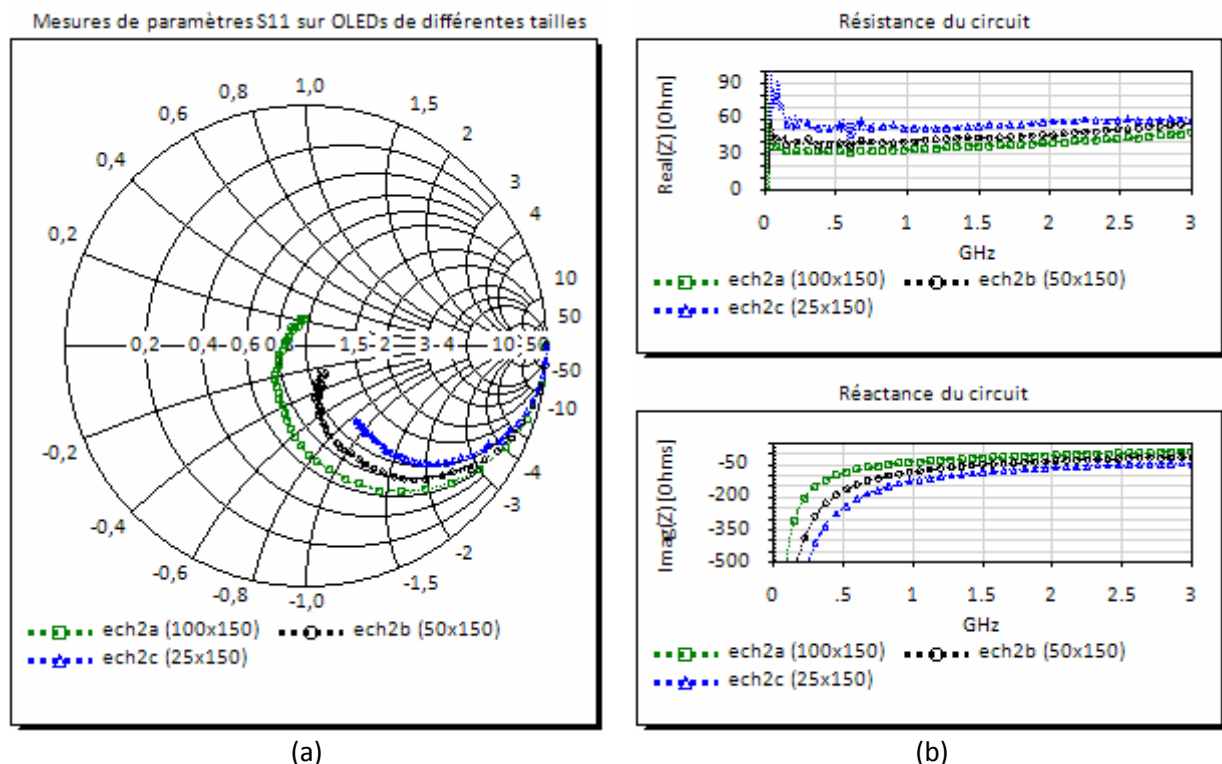


Figure 4.6 : Estimation de résistance et de capacité du circuit à partir des mesures du paramètre S11



Les traces obtenues ainsi que les courbes d'impédances qui en sont déduites sont consignées sur les *Figure 4.6a* et *Figure 4.6b* respectivement. On remarque de façon générale un comportement «  $RC$  série » du circuit pour les fréquences inférieures à  $1.5\text{GHz}$ . Le  $R$  représenterait alors la résistance totale du circuit d'excitation et le  $C$  la capacité du modèle électrique de l'OLED.  $R$  et  $C$  sont estimés en exploitants les parties réelles et imaginaires des impédances équivalentes au paramètres  $S_{11}$  mesurés. La résistance série du modèle est par la suite obtenue en déduisant la résistance de mesure estimée précédemment (à  $13.60\Omega$ ) de la résistance totale  $R$ . Les valeurs moyennes sont données dans le *Tableau 4.3*.

Tableau 4.3 : Estimation de la résistance série et la capacité de l'OLED

		Echantillons / tailles					
		ech2a		ech2b		ech2c	
Taille de l'échantillon		$100\mu\text{m} \times 150\mu\text{m}$		$50\mu\text{m} \times 150\mu\text{m}$		$25\mu\text{m} \times 150\mu\text{m}$	
Résistance série totale $R_C + R_s'$ (mesurée)		33.94	34.22	41.02	40.03	53.62	55.83
Résistance de l'anode $R_s'$ (déduite de la mesure)		20.34	20.62	27.42	26.43	40.02	42.23
Capacité	(pF)	4.22	5.21	1.94	1.93	1.28	1.33
	(nF/cm <sup>2</sup> )	28.13	34.73	25.87	25.73	34.13	35.47

Le circuit est beaucoup plus résistif pour les échantillons de plus petites tailles, avec des valeurs qui rentrent bien dans les plages de prévisions théoriques. En revanche, c'est la tendance inverse avec la capacité qui est plus faible pour les plus petits échantillons. On note aussi que les valeurs estimées de capacité par unité de surface ne sont pas loin de la capacité géométrique théorique de l'OLED qui est de  $28\text{nF}/\text{cm}^2$ . Ces mesures seront, au besoin, introduites dans la suite au modèle électrique de l'OLED pour estimer d'autres grandeurs, notamment la valeur du courant réel responsable de l'électroluminescence dans l'OLED ainsi que la tension réelle à ses bornes.

#### 4.3.2. Caractérisation d'OLED en régime continu : courbe IVL et spectre

Cette caractéristique s'obtient à l'aide d'un source-mètre et d'un puissance-mètre optique en mesurant le courant de l'OLED et sa luminance pour plusieurs amplitudes d'excitation.

Il s'agit ici, surtout d'une mesure de qualification permettant, à partir de l'allure de la caractéristique de part et d'autre de la tension nulle, d'apprécier la qualité de réalisation du composant. En particulier, elle permet d'identifier un éventuel court-circuit provoqué par effet de bord pendant le processus de fabrication de l'OLED, le court-circuit étant, en principe, décelable par un courant observable pour les tensions négatives. Ces courants de court-circuits présentent une caractéristique linéaire symétrique autour de la tension nulle.

La caractéristique IVL mesurée est représentée sur la *Figure 4.7a*. Pour éviter tout risque de destruction du composant, la tension d'excitation est limitée à  $12\text{V}$ . Cette caractéristique est bien conforme à celle d'une OLED normale bien que les électrodes soient structurées.

Elle émet effectivement de la lumière dès l'apparition d'un courant pour une tension seuil au voisinage de 5V.

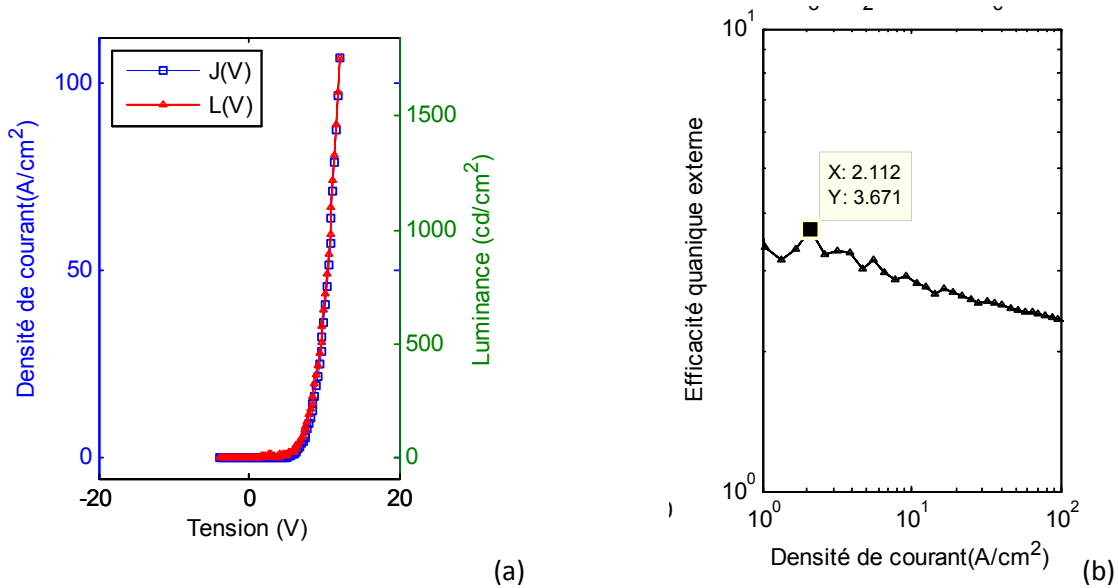


Figure 4.7 : Caractéristique courant – Luminance / tension et de l'OLED en régime continu

Selon la Figure 4.7b, le rendement quantique maximal est de 3.5% à  $2 A/cm^2$  et décroît à 2.33% pour un courant de  $107 A/cm^2$ . La valeur de 3.5% est conforme aux rendements quantiques à l'état de l'art pour ce type d'hétérostructure et le rendement quantique interne correspondant (18.35%) est proche du maximum théorique de 25%. L'affaiblissement (roll-off) observé avec l'augmentation de la densité de courant est en accord avec d'autres résultats de la littérature [1]. Cependant, on observe une nette réduction du roll-off qui peut être attribuée aux dimensions micrométriques de l'OLED [2]

Le spectre d'émission, représenté sur la Figure 4.8 révèle une émission dans le rouge centrée sur  $610nm$ , ce qui correspond bien au spectre du matériau émetteur utilisé qui est le DCM. On note un décalage vers le rouge quand on augmente la tension d'excitation.

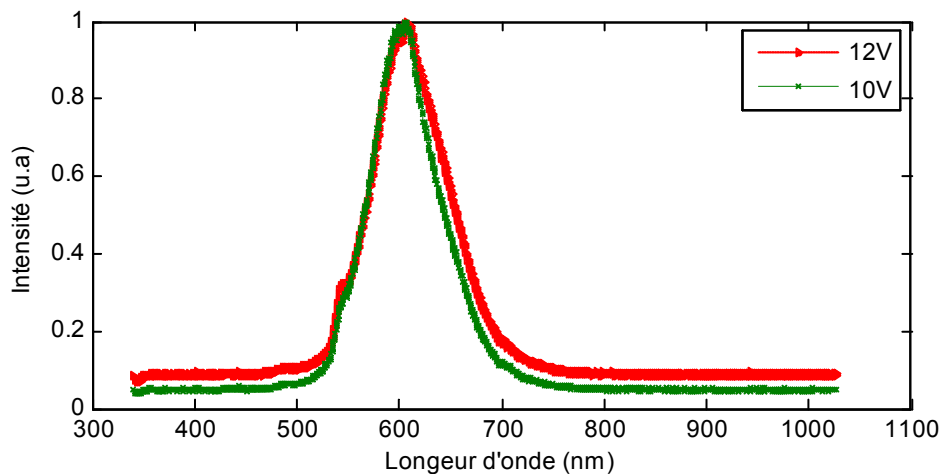


Figure 4.8 : Spectre type des échantillons réalisés : émission dans le rouge autour de 610nm

#### 4.4. REPONSE ELECTRIQUE ET OPTIQUE EN REGIME D'IMPULSIONS

Les mesures sont effectuées sur des échantillons métallisés d'OLEDs de différentes tailles ( $25\mu m \times 150\mu m$ ,  $50\mu m \times 150\mu m$  ou  $100\mu m \times 150\mu m$ ). Les variables d'excitation sont les durées d'impulsion et leurs amplitudes.

##### 4.4.1. Influence de la durée des impulsions

L'amplitude de l'excitation est fixée à  $40V$ , en dessous de la valeur limite de  $50V$  au-delà de laquelle les premiers échantillons testés ont commencé à montrer des signes de dégradation. Les durées d'impulsion varient entre  $20ns$  et  $2.5ns$ . Les courbes type de mesures d'excitation, de réponses électrique et optique sont présentées sur la *Figure 4.9*.

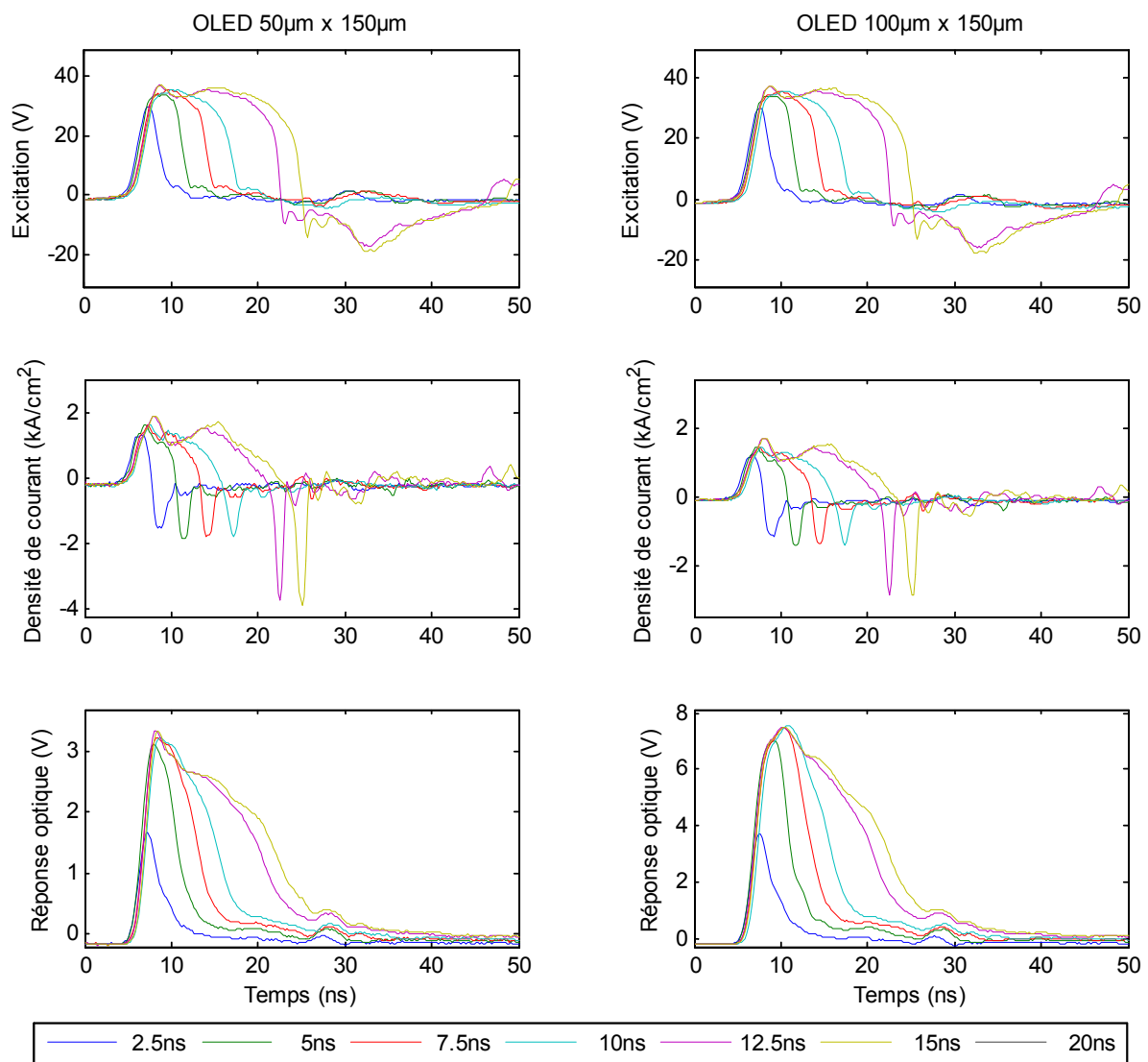


Figure 4.9 : Influence de la largeur d'impulsion sur la réponse des OLEDs

Sur la première ligne, on observe que les impulsions d'excitation ont la même valeur crête à l'exception de l'impulsion de  $2.5ns$ . Si on regarde les réponses électriques, elles recopient toutes les durées d'impulsions de l'excitation, ce qui signifie que les temps de réponse sont plus courts que les impulsions. Les amplitudes crêtes se situent également toutes au même

niveau, à l'exception des impulsions de  $2.5\text{ns}$ , ce qui peut s'expliquer, dans ces cas particuliers, par le fait de l'excitation n'ait pas eu le temps d'atteindre sa valeur crête avant la fin de l'impulsion.

Concernant la réponse optique, la première remarque est que l'on observe une réponse optique significative pour des impulsions aussi courtes que  $2.5\text{ns}$ , limite par ailleurs imposée par notre générateur d'impulsions. Une fois de plus, on atteint quasiment les mêmes valeurs crêtes, avec une recopie des durées d'impulsions. La réponse est doublée pour l'échantillon de  $100\mu\text{m} \times 150\mu\text{m}$  parce que sa surface active est double. On note également, pour des durées d'impulsions plus grandes, qu'après une montée rapide vers l'intensité maximale, atteinte entre  $5\text{ns}$  et  $7.5\text{ns}$ , l'électroluminescence commence à s'atténuer au-delà de  $10\text{ns}$  quand bien même l'impulsion d'excitation est plus longue, ce qui pourrait indiquer un début d'accumulation d'états triplets non radiatifs et responsables de pertes.

Indépendamment de la taille des échantillons, de la durée et de l'amplitude de l'impulsion, les temps de montée des différents signaux mesurés sont de  $2.2\text{ns}$ ,  $2.6\text{ns}$  et  $1.8\text{ns}$  pour le signal d'excitation, la réponse électrique et la réponse optique respectivement.

Les premières conclusions à tirer de ces observations sont les suivantes :

- les OLEDs réalisées répondent efficacement à des impulsions aussi courtes que  $2.5\text{ns}$  ;
- le régime permanent de la réponse optique des OLEDs est atteint entre  $5\text{ns}$  et  $7.5\text{ns}$  ;
- pour les impulsions longues ( $> 10\text{ns}$ ), l'intensité lumineuse s'atténue au delà de la dizaine de nanoseconde après le début d'impulsion ; il semblerait qu'il ne soit pas nécessaire d'aller au delà si on veut conserver un rendement d'électroluminescence optimal.

Le comportement des OLEDs étant différent pour l'impulsion de  $2.5\text{ns}$ , et en prenant en compte que pour cette même durée le générateur délivre une amplitude d'excitation plus faible, on peut s'interroger sur le rôle de l'amplitude d'excitation sur la réponse des OLEDs. Ce sera l'objet du paragraphe suivant.

#### 4.4.2. Influence de l'amplitude des impulsions d'excitation

Pour aborder cette question, on étudie la réponse des OLEDs en fixant cette fois la durée d'impulsion et en faisant varier l'intensité d'excitation. Les mesures sont présentées sur la *Figure 4.10*. A partir des données de ces mesures, les densités de courant crêtes, ainsi que les intensités lumineuses crêtes sont représentées en fonction de la tension d'excitation crête mesurée, pour chacune des durées d'impulsions, voir *Figure 4.11*.

Sur la figure *Figure 4.11a*, on ne note pas de différence significative pour les différentes durées d'impulsion y compris pour  $2.5\text{ns}$ , ce qui est un argument en faveur d'une réponse électrique efficace et d'une constante de temps électrique inférieure à  $2.5\text{ns}$ . Il faut

cependant noter que cette courbe n'est pas la caractéristique  $I(V)$  de l'hétérostructure organique, car la réponse électrique mesurée ici diffère du courant effectif responsable de l'électroluminescence dans l'OLED, c'est-à-dire le courant traversant la résistance dynamique ; ce courant sera estimé au paragraphe 4.5 en s'appuyant sur le modèle électrique.

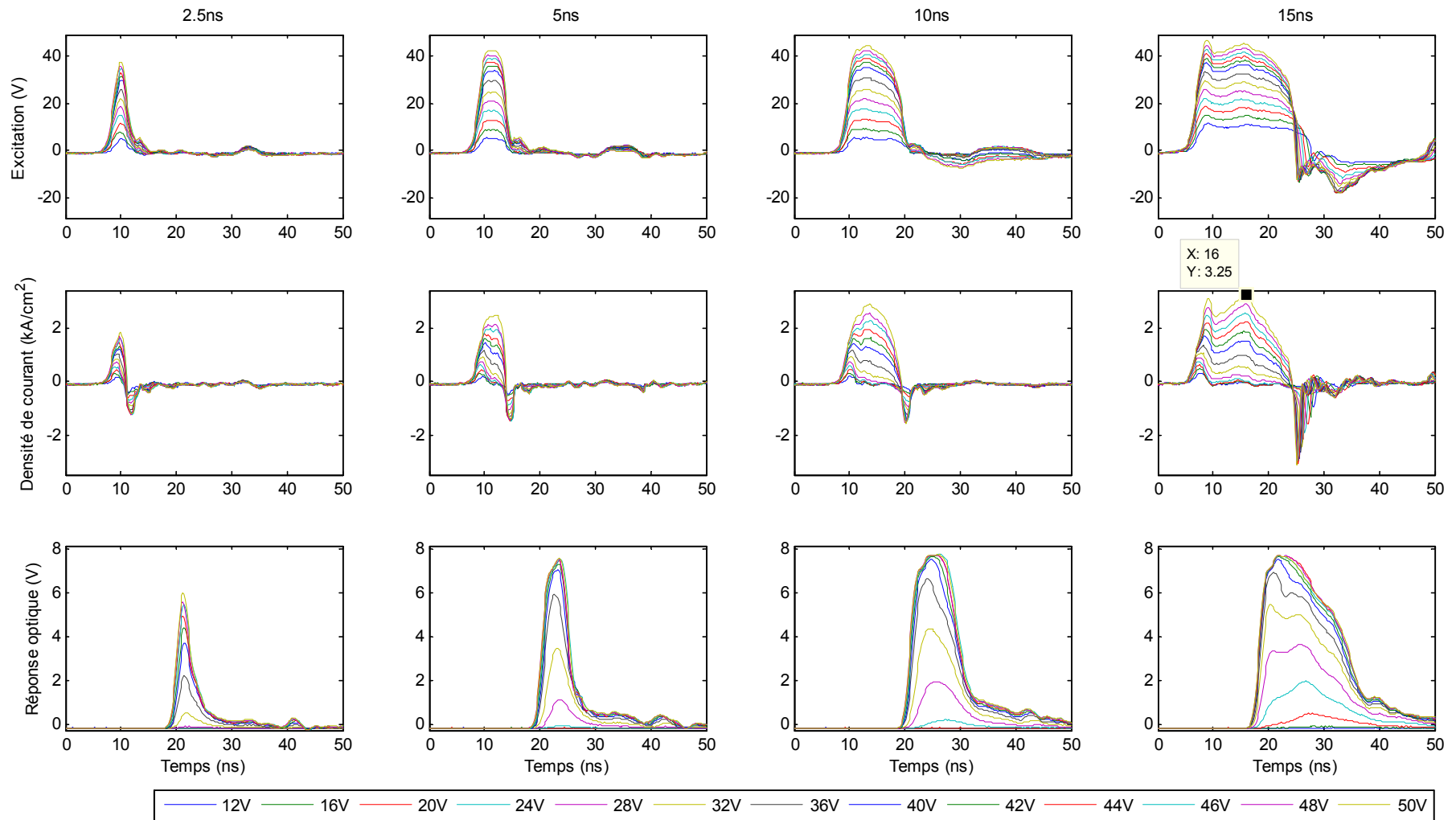


Figure 4.10 : Evolution de la réponse de l'OLED avec l'amplitude d'excitation

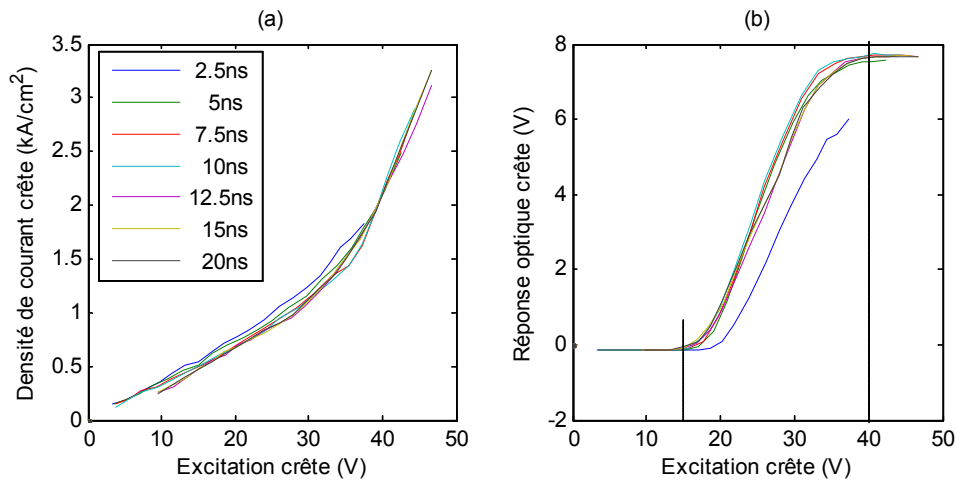


Figure 4.11 : Evolution des crêtes de densité de courant de luminance en fonction de l'excitation crête

Sur la figure Figure 4.11b, on peut faire les observations suivantes :

- pour les amplitudes d'excitation inférieures à  $15V$ , il n'y a pas de d'émission lumineuse détectable ;
- au-delà de  $15V$ , on commence à observer une réponse optique croissante avec l'amplitude de l'excitation, jusqu'à  $40V$  ;
- au-delà de  $40V$ , il n'y a plus d'amélioration significative de l'électroluminescence (à  $50V$  certains échantillons commencent à se dégrader) ;
- on note une différence de réponse pour les impulsions de  $2.5ns$ , ce qui incite à penser que la constante de temps optique est comprise entre  $2.5ns$  et  $5ns$ .

#### 4.4.3. Spectre optique résolu en temps

Le spectre optique résolu en temps a été mesuré à l'aide d'un spectromètre couplé à une camera à balayage de fente. La Figure 4.12a montre en 3D (temps, longueur d'onde, intensité lumineuse), la moyenne sur une séquence de dix images de la caméra. Le spectre instantané peut être obtenu par extraction, à un instant donné, du profil de cette image suivant l'axe des longueurs d'onde.

Le spectre moyen représenté sur la Figure 4.12b révèle une émission centré sur  $600nm$ , ce qui correspond bien à l'émission du DCM. On note une concordance avec le spectre mesuré en continu (Figure 4.8), bien que celui-ci soit légèrement plus large sur le flanc des plus grandes longueurs d'onde et centré sur  $610nm$ .

La Figure 4.12d montre quelques clichés instantanés de spectre du même échantillon à trois instants différents  $t_1$ ,  $t_2$  et  $t_3$  correspondant respectivement au flanc montant, au milieu et au flanc descendant de l'impulsion d'excitation. On note qu'il est invariant dans le temps, ce qui valide l'utilisation du spectre continu dans le calcul de la puissance lumineuse ou du rendement quantique.

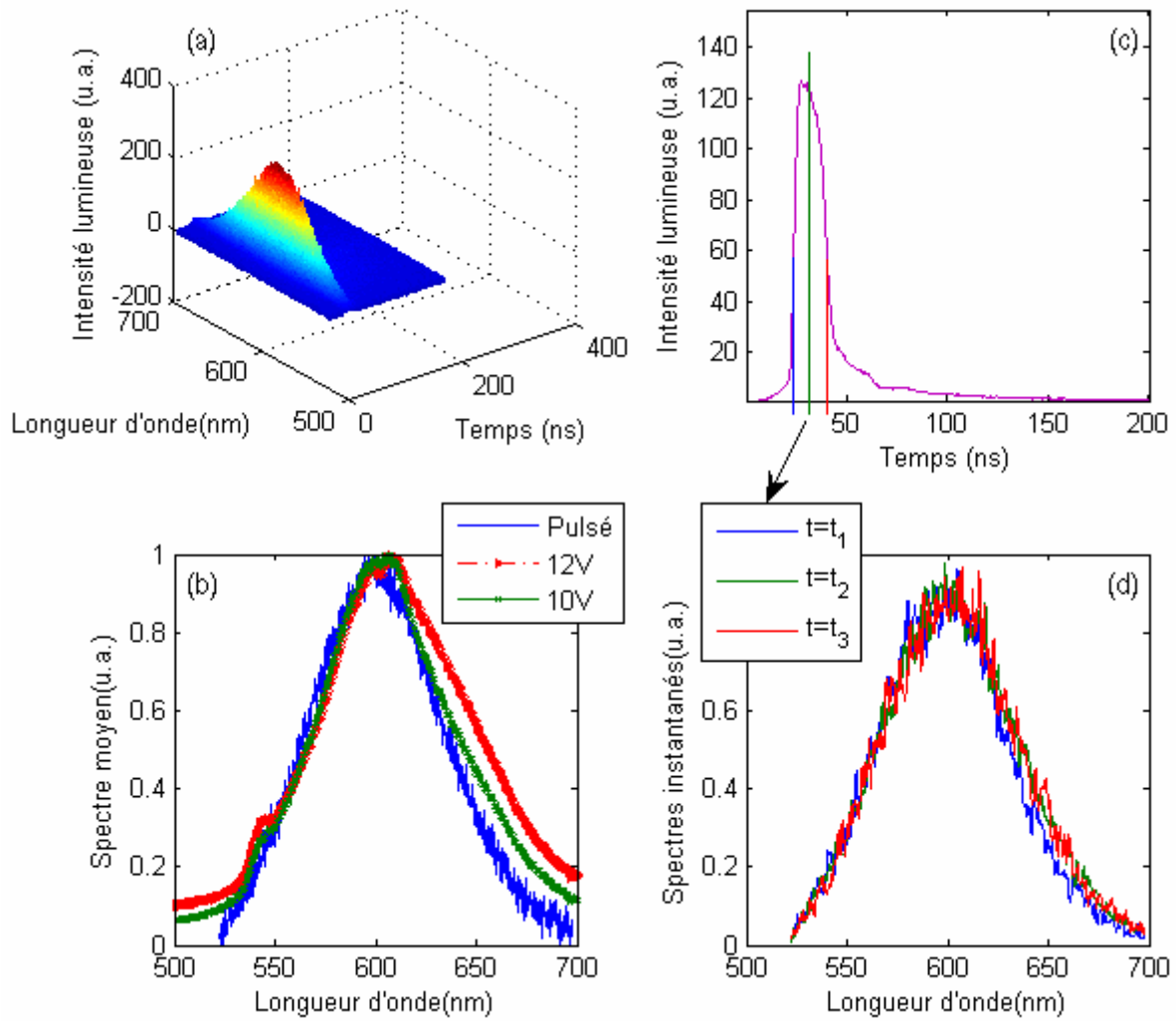


Figure 4.12 : Spectre optique résolu en temps

#### 4.5. VALIDATION DU MODELE

Cette section est consacrée à la confrontation des mesures avec le modèle électrique proposé au chapitre 2. Il doit permettre entre autre d'accéder à la constante de temps, à densité de courant effective et au rendement quantique.

Selon les relations Eq 2.5 et Eq 2.6 du chapitre 2, la constante de temps  $\tau$  et le courant  $i_D$  nécessitent de connaître la résistance dynamique  $R_d$ . Par ailleurs,  $R_d$  est la pente de la caractéristique courant tension de l'hétéro structure à une tension donnée. Comme signalé en introduction, cela constitue une imbrication qui rend difficile l'estimation de  $R_d$ .

En régime continu, la caractéristique  $I(V)$  du paragraphe 0 permet d'accéder à  $R_d$ , mais seulement jusqu'à  $20V$ . Une première approche consiste donc à l'extrapoler au-delà de  $20V$ .

Une deuxième approche d'accès à la résistance dynamique consiste à l'extraire à partir des caractéristiques  $I(V)$  établies sur la base de réponses électriques en régime d'impulsion.



La troisième approche est numérique et consiste à estimer  $R_d$  à partir d'un rapprochement du modèle électrique et des données expérimentales.

#### 4.5.1. Extrapolation de la résistance dynamique à faible tension

La Figure 4.13 reprend en (a) la caractéristique IV en continu de la Figure 4.7 d'où on extrait l'inverse de la pente représentée en fonction de la tension en (b). La résistance équivalente à cette pente est la somme de toutes les résistances en série dans le circuit équivalent. Il suffit alors d'y soustraire la résistance série et la résistance de charge pour accéder à la résistance dynamique.

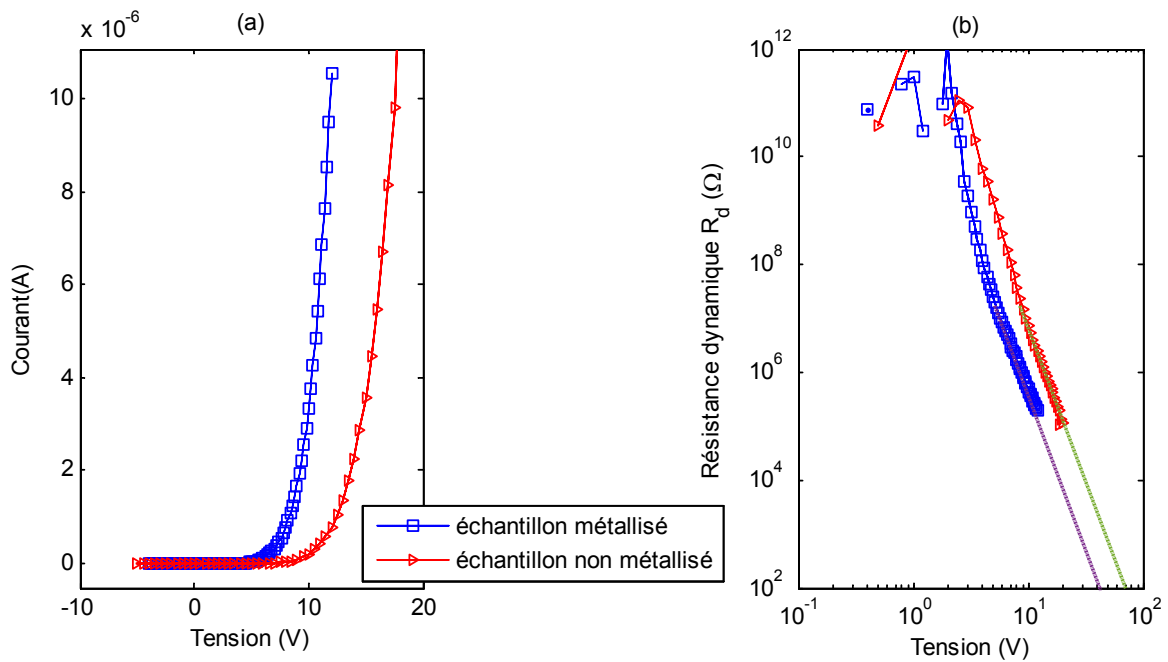


Figure 4.13 : Extrapolation de la résistance dynamique à partir des mesures en courant continu

L'extrapolation vers les hautes amplitudes d'excitation permet d'estimer sa valeur pour les tensions d'excitation de  $30V$ ,  $40V$  et  $50V$ , sous réserve que la tendance reste inchangée sur plus de deux octaves. Déduction faite des résistances série mesurées au paragraphe 4.3.1.5, on obtient la valeur correspondante de  $R_d$  pour chaque échantillon et pour chaque point de mesure, voir Tableau 4.4 pour quelques exemples.

Tableau 4.4 : Extrait par extrapolation de la caractéristique  $I(V)$  en continu de quelques valeurs de résistance dynamique aux hautes amplitudes d'excitation

Niveau d'excitation	Echantillon métallisé			Echantillon non métallisé		
	30V	40V	50V	30V	40V	50V
$R_c + R_s + R_d (\Omega)$	//	310 $\Omega$	100 $\Omega$	//	2800 $\Omega$	790 $\Omega$
$R_d (\Omega)$	//	276 $\Omega$	66 $\Omega$	//	2766 $\Omega$	756 $\Omega$

#### 4.5.2. Extrapolation de la résistance dynamique en régime d'impulsion

Cette deuxième approche consiste à reconstruire la caractéristique IV à partir des mesures résolues en temps, présentées précédemment, pour en extraire la pente et la résistance dynamique.

D'après le modèle électrique présenté au chapitre deux, le courant effectif qui passe dans la résistance dynamique est obtenu en déduisant du courant global mesuré la part qui passe par la capacité (voir modèle de la figure 2.2b). La tension quant à elle est obtenue en soustrayant de l'excitation la chute de tension aux bornes de l'ensemble des résistances série. Les relations qui les relient aux grandeurs électriques mesurées (excitation  $v_E$  et courant global  $i$ ) sont :

$$v_D = v_E - \left(1 + \frac{R_s}{R_c}\right) v_{mes} = v_E - (R_c + R_s) i \quad \text{Eq. 4.1}$$

puis

$$i_D = i - c \frac{dv_D}{dt} \quad \text{Eq. 4.2}$$

Leurs traces sont représentées à la *Figure 4.14* pour quelques valeurs de durées d'impulsion et pour un échantillon de  $100\mu m \times 150\mu m$ .

En comparaison avec la *Figure 4.10*, on remarque que le courant d'OLED est quasiment la recopie de la réponse électrique global du le circuit. Cela peut être interprété comme un temps de réponse très court ou tout au moins inférieure à la limite de résolution temporelle de l'oscilloscope qui est de  $200ps$ .

Pour une largeur d'impulsion donnée, la caractéristique courant tension reconstruite de l'hétéro structure, s'obtient en calculant le couple  $(I_D, V_D)$  pour toutes les amplitudes d'excitation en prenant leur moyenne autour du centre de l'impulsion sur une durée égale à la moitié de l'impulsion. La résistance dynamique déduite de cette caractéristique en calculant l'inverse de la pente est représentée sur la même figure. Quelques valeurs sont consignées dans le *Tableau 4.5*.

*Tableau 4.5 : Extrait de quelques valeurs de résistance dynamique aux hautes amplitudes d'excitation*

	Impulsion de 10ns			Impulsion de 15ns		
$V_E (V)$	30	40	50	30	40	50
$V_D (V)$	20.46	27.18	29.63	20.86	26.83	29.14
$R_d (\Omega)$	146.4	24.58	2.46	131.9	24.46	2.03

Cette approche donne des valeurs de  $R_d$  beaucoup plus faible qu'avec la méthode précédente.

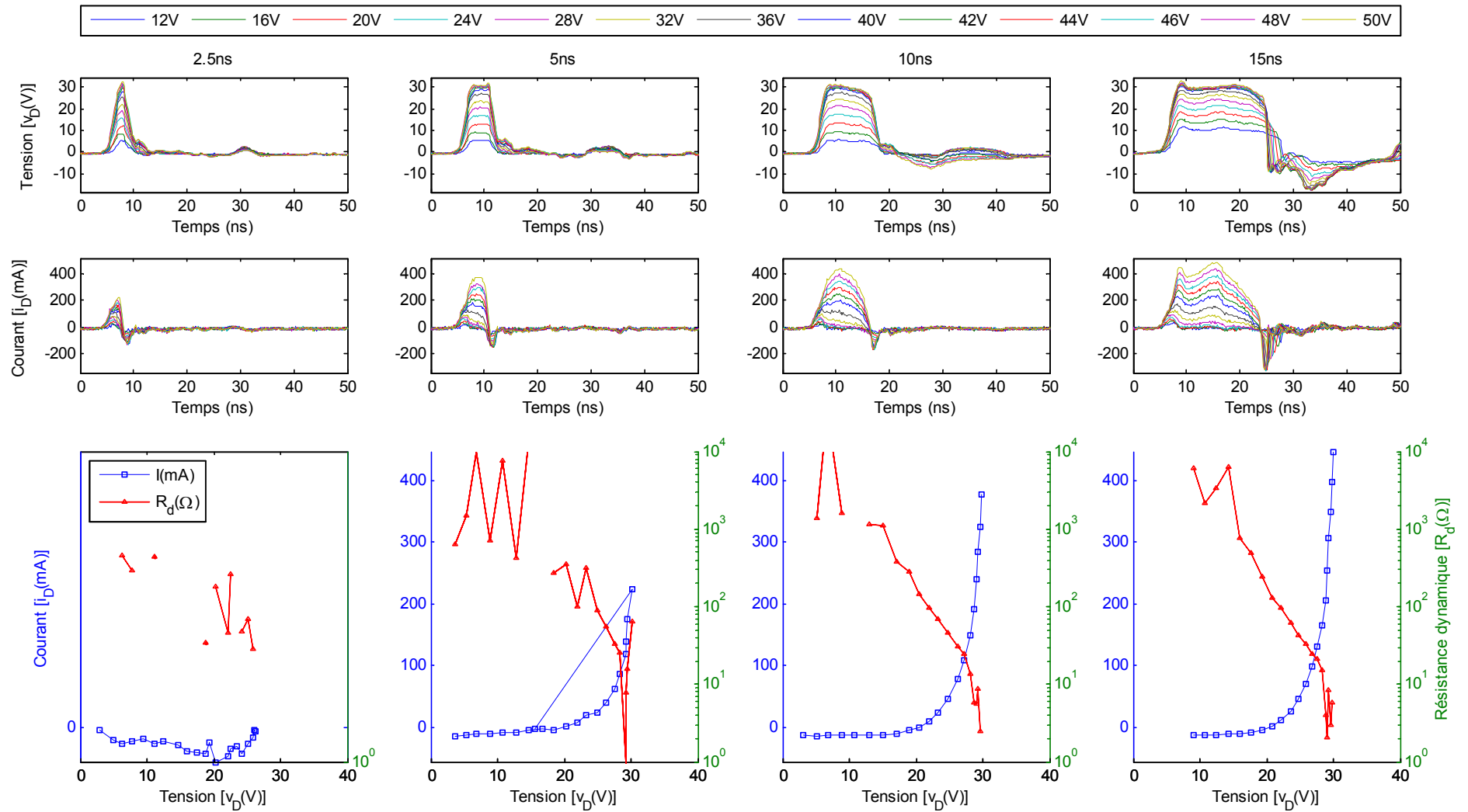


Figure 4.14 : Courant et tension d'hétéro structure, caractéristique  $I(V)$  reconstruite en régime pulsé, résistance dynamique

#### 4.5.3. Extraction du modèle électrique par identification « fit »

La troisième approche repose sur le rapprochement par calcul numérique du comportement expérimental du circuit avec le modèle électrique de l'OLED à trois paramètres ( $R_s$ ,  $R_d$ ,  $C$ ). Le *Tableau 4.6* donne un extrait des résultats obtenus pour un échantillon métallisé de  $100\mu m \times 150\mu m$  pour quelques couples amplitude d'excitation / durée d'impulsion. La qualité du rapprochement est donnée en pourcentage sur la ligne « fitness » du tableau.

*Tableau 4.6 : Extrait de quelques valeurs de paramètre du modèle électrique d'un échantillon métallisé aux hautes amplitudes d'excitation*

	Impulsions de 10ns		Impulsions de 15ns	
	30	40	30	40
$V_E (V)$				
$R_s (\Omega)$	54.49	47.17	46.78	46.37
$R_d (\Omega)$	1788	390.25	1751	395.54
$C (pF)$	5.19	5.15	4.46	4.67
„Fitness“	75.30%	71.31%	74.15%	72.72%

Les meilleurs résultats obtenus par cette approche présentent un taux de rapprochement de 75.30%. Ce qui n'est pas très satisfaisant, bien que les valeurs de capacités soient proches des mesures effectuées à l'analyseur de réseau vectoriel. Les valeurs de résistances dynamiques sont par ailleurs trop divergentes, comparativement aux résultats obtenus avec l'approche précédente.

#### 4.5.4. Comparaison des 3 approches

Le *Tableau 4.7* suivant compare les valeurs de résistances dynamiques obtenues par les différentes approches.

*Tableau 4.7 : Comparatifs des approches pour la détermination de la résistance dynamique  $R_d$*

Approches	Mesures en continu		Mesure en impulsionnel	
			Moyenne pour 10ns et 15ns	Fit numérique
Echantillons	Non-métallisé	Métallisé	Métallisé	Métallisé
à $V_E = 30V$	///	///	140 $\Omega$ (10%)	1770 $\Omega$ (1%)
à $V_E = 40V$	2760 $\Omega$	276 $\Omega$	24 $\Omega$ (0.2%)	390 $\Omega$ (0.2%)
à $V_E = 50V$	750 $\Omega$	76 $\Omega$	2 $\Omega$ (10%)	150 $\Omega$ (6%)
Commentaires	Fiabilité limitée par l'extrapolation sur plus de 2 octaves		Les valeurs de à haute tension semblent trop faibles	Le facteur de fitness n'indique pas une grande fiabilité sur les valeurs

Concernant la méthode par extrapolation de la caractéristique  $I(V)$  en continu, la nature de la résistance dynamique  $R_d$  devrait nous amener à obtenir des valeurs identiques qu'il y ait ou pas métallisation. Mais en fait, on observe un écart qui peut s'expliquer par des tensions effectives  $V_D$  différentes à tensions d'excitation  $V_E$  identiques. Pour comparer les  $R_d$  il faut travailler à courant constant, c'est-à-dire à courant  $I_D$  identiques. Avec l'approche par reconstruction de la caractéristique  $I(V)$  en régime d'impulsion, les valeurs de résistance de quelques Ohms paraissent faibles puisque une valeur de  $2\Omega$  correspond à un stade de pré destruction de la diode ( $0\Omega$  correspondrait à une pente infinie de la courbe  $I(V)$  et donc un courant illimité. Les valeurs de la résistance dynamique obtenues par la troisième approche correspondent à un indicateur de fiabilité de 75% ce qui limite beaucoup leur crédibilité. Dans ces conditions, il est difficile de choisir une méthode plutôt qu'une autre et d'évaluer la résistance dynamique. La combinaison des trois méthodes définit à  $40V$  une plage de résistance dynamique dans l'intervalle de  $2\Omega$  à  $400\Omega$ . Il est par contre possible de comparer avec les mesures expérimentales les résultats de trois simulations calculées à partir des trois paramètres issus de chacune des méthodes.

#### 4.5.5. Ajustement du modèle électrique

Dans ce paragraphe sont comparées la réponse électrique mesurée avec les réponses simulées pour une impulsion de  $40V$  de  $10ns$  de durée d'impulsion afin d'évaluer la valeur de la résistance dynamique la plus probable.

Les mesures expérimentales ont tout d'abord été réalisées avec un échantillon métallisé de dimension  $100 \times 150 \mu m^2$  dont les résistances séries et capacités obtenus par mesure VNA sont  $R_s = 20\Omega$ ,  $R_c = 13\Omega$  et  $C_1 = 4 pF$ . Les simulations utilisent ces mêmes valeurs ainsi que trois valeurs de résistance dynamique  $R_{d1} = 276\Omega$ ,  $R_{d2} = 390\Omega$  et  $R_{d3} = 24\Omega$  estimées par chacune des trois approches d'extrapolation. Le signal d'excitation utilisé dans les simulations est le signal mesuré pour une amplitude d'excitation  $V_E = 40V$ , et représenté en ligne bleue sur la *Figure 4.15a*. Ils présentent des flancs lisses et progressifs et peuvent qualitativement s'apparenter à la fonction sigmoïde du chapitre 2 (*Figure 2.10*) ce qui renforce l'aspect prédictif de ces précédents calculs. Les comparaisons entre les mesures et les simulations sont représentées sur la même *Figure 4.15a*, tandis que la densité de courant et le signal lumineux sont représentés sur la *Figure 4.15b*.

La comparaison entre signaux mesurés et simulations révèle qu'aucune des trois valeurs de la résistance dynamique ne convient. La simulation obtenue avec la valeur  $R_{d3} = 24\Omega$  est clairement éloignée et irréaliste ; elle révèle une sous estimation de la résistance dynamique. En revanche une valeur  $R_{d4} = 140\Omega$  obtenue par essai/erreur, et située dans la plage  $[24\Omega, 390\Omega]$ , donne une bien meilleure correspondance à la fois qualitative avec un rebond de courant et quantitative avec une valeur moyenne correcte.

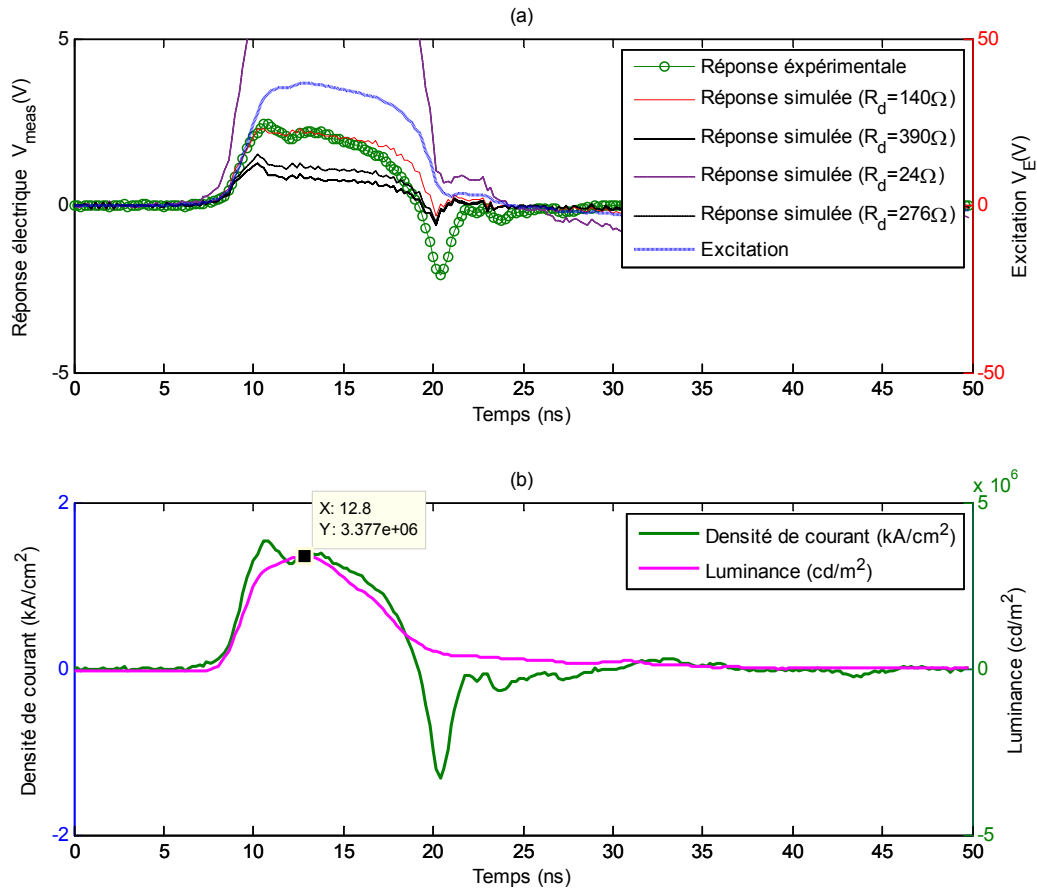


Figure 4.15 : Comparaison des mesures et des simulations pour différentes valeurs de la résistance dynamique.

La densité de courant crête est de  $J_{D_{max}} = 1.57 \text{ kA} / \text{cm}^2$  et l'intensité lumineuse crête est de  $L_{max} = 3.38 \times 10^6 \text{ cd} / \text{cm}^2$ .

L'impulsion optique quant à elle présente une durée d'impulsion à mi-hauteur de  $8.1 \text{ ns}$  inférieur à la durée de l'impulsion électrique et un temps de montée de  $2.3 \text{ ns}$  supérieur de 10% au temps de montée électrique ( $2.1 \text{ ns}$ ).

Les mesures expérimentales ont ensuite été comparées aux simulations pour un échantillon non métallisé de dimensions  $80 \times 120 \mu\text{m}^2$  dont les résistances séries et la capacité sont  $R_s + R_c = 116 \Omega$  et  $C = 1.4 \text{ pF}$ . A la tension d'excitation crête de  $V_E = 90 \text{ V}$  la simulation obtenue avec la résistance dynamique  $R_d = 310 \Omega$  tracée en rouge sur la Figure 4.16a présente pour les tensions positives une parfaite correspondance avec le signal mesuré. Elle est également très similaire au scénario 2 du chapitre 2. La réponse électrique présente une durée d'impulsion à mi-hauteur de  $9 \text{ ns}$  similaire à celle de l'excitation.

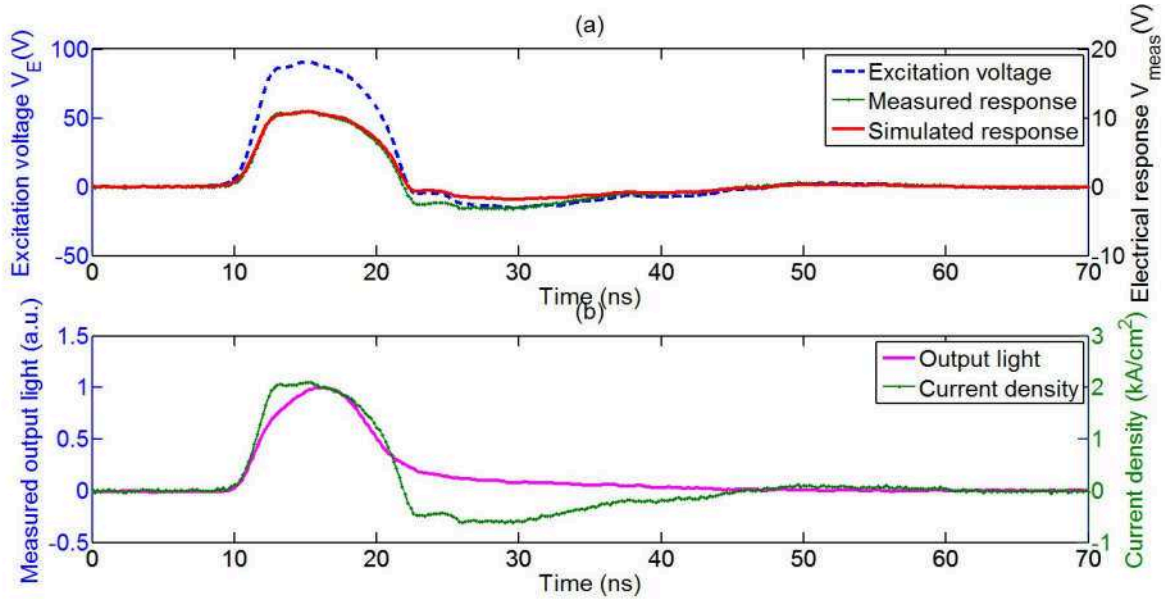


Figure 4.16 : Réponse électrique et optique de  $\mu$ -OLED non métallisé pour des impulsions de 10ns de durée et de 100V d'amplitude de consigne.

a) Excitation  $V_E(t)$  (ligne pointillée bleue), réponse électrique mesurée  $V_{meas}(t)$  (ligne verte avec des points) et réponse obtenue par simulation (ligne rouge épaisse) b) Densité de courant mesurée  $J_D(t)$  (ligne verte avec points) et réponse optique (ligne magenta).

Sur la Figure 4.16b, la densité de courant crête atteint  $J_{D_{max}} = 2.04 \text{ kA/cm}^2$ , qui ne diffère que de 3% du maximum de densité de courant ( $2.1 \text{ kA/cm}^2$ ) calculé au chapitre 2. Le temps de montée du courant de 10% à 90% est de  $2.1 \text{ ns}$ . L'impulsion optique quant à elle présente une durée d'impulsion à mi hauteur de  $8.2 \text{ ns}$  inférieur à la durée de l'impulsion électrique et un temps de montée de  $3.6 \text{ ns}$  supérieur de 70% au temps de montée électrique ( $2.1 \text{ ns}$ ). Une analyse qualitative du signal de l'émission lumineuse, montre qu'il augmente exponentiellement pendant la moitié de la durée de l'impulsion électrique et décroît exponentiellement après ce qui confirme une dynamique différente et plus lente que la réponse électrique. Des études complémentaires avec une photodiode plus rapide sont nécessaires pour vérifier si le signal mesuré est limité par le temps de réponse de la photodiode.

La comparaison des réponses électriques et des simulations montrent donc globalement une bonne adéquation qualitative qui valide le modèle en régime tout-ou-rien et démontre sa pertinence. Cette validation va permettre de calculer avec davantage de fiabilité les constantes de temps.

En utilisant l'expression de la constante de temps calculée analytiquement au chapitre 2 on obtient pour les deux cas précédents les constantes de temps électriques suivantes :

- $\tau_e = 112 \text{ ps}$  dans le cas de l'échantillon métallisé, avec les valeurs de paramètres électriques  $R_s = 20 \Omega$ ,  $R_c = 13 \Omega$ ,  $R_d = 140 \Omega$  et  $C_1 = 4 \text{ pF}$  ;

- $\tau_e = 110\text{ps}$  dans le cas de l'échantillon non métallisé, avec  $R_s = 106\Omega$ ,  $R_d = 310\Omega$  et  $C_2 = 1.4\text{pF}$  ; il faut noter que le temps de montée de  $2.1\text{ns}$  est différent du temps de montée théorique estimé à  $\approx 2.2\tau_e = 242\text{ps}$  tout simplement parce que le signal d'excitation n'est pas une fonction échelon mais se rapproche plutôt d'une fonction sigmoïde.

Les constantes de temps électriques des  $\mu$ -OLED avec électrodes CPW, sont donc de deux ordres de grandeurs plus faibles que celles rapportées dans la littérature avec une surface active similaire ( $\tau_e \ll (9.6 \pm 3.3)\text{ns}$  [3]). Une telle réponse électrique quasi adiabatique explique à la fois pourquoi les réponses recopient l'impulsion d'excitation et pourquoi aucun pic de courant de charge de la capacité n'est visible. Du point de vue électrique il apparaît donc possible de soumettre les  $\mu$ -OLED CPW à des impulsions électriques sub-nanosecondes tout en conservant une réponse correcte. Seule l'absence d'un générateur suffisamment rapide nous a empêché de le vérifier expérimentalement. Ceci est une indication expérimentale de l'intérêt des électrodes CPW.

Une deuxième indication de l'apport bénéfique des électrodes CPW, apparaît dans la comparaison de la capacité et de la capacité surfacique de  $\mu$ -OLED avec et sans électrodes CPW. Les capacités surfaciques calculées à partir du rapport des capacités  $C_1$ ,  $C_2$  et des surfaces actives  $S_1 = 100 \times 150\mu\text{m}^2$  et  $S_2 = 80 \times 120\mu\text{m}^2$  sont respectivement  $28\text{nF}/\text{cm}^2$  et  $13.8\text{nF}/\text{cm}^2$ . Ces valeurs sont dix fois plus faibles que ce que notre équipe avait pu estimée précédemment [3], ce qui est davantage en accord avec d'autres valeurs rapportées dans la littérature dans la place  $20 - 40\text{nF}/\text{cm}^2$  mesurée dans l'échelle des  $\text{MHz}$  [4]. Les surfaces actives étant similaires, la différence d'un facteur 10 à l'échelle des  $\text{GHz}$  ne peut s'expliquer que par l'apport des électrodes CPW. Les résultats précédents [3] peuvent s'expliquer par l'absence d'électrode à impédance caractéristique spécifique provoquant une désadaptation de la ligne électrique et l'introduction de capacité parasite, par la distance de la résistance de mesure qui combinées résultent en une capacité parasite dix fois supérieures ( $24\text{nF}/\text{cm}^2$ ).

#### 4.5.6. Densités de courant crêtes et intensités lumineuses crêtes

Les densités de courants crêtes  $J_{D\text{max}}$  et les luminances crêtes  $L_{\text{max}}$  obtenues précédemment avec les paramètres  $R_s$ ,  $R_c$ ,  $R_d$  et  $C$  sont systématiquement extraites pour différentes tensions d'excitation  $V_D$  et pour trois types d'échantillons métallisés de tailles différentes ( $25 \times 150\mu\text{m}^2$ ,  $50 \times 150\mu\text{m}^2$ ,  $100 \times 150\mu\text{m}^2$ ). Ceci permet de tracer les caractéristiques  $J_{D\text{max}}(V_D)$  et  $L_{\text{max}}(J_{D\text{max}})$  de chacun de ces types d'échantillons.



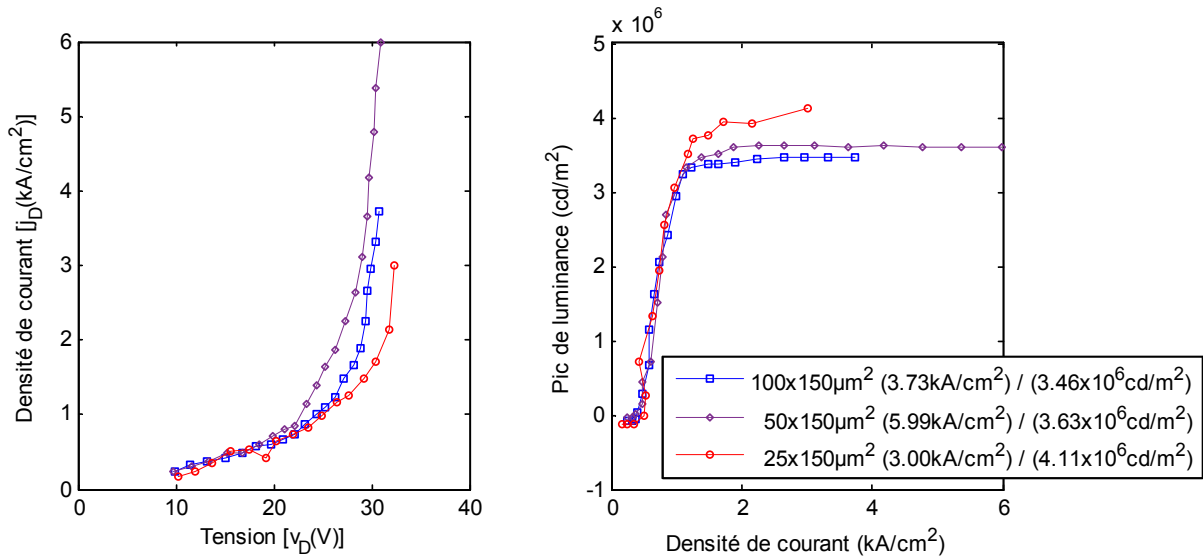


Figure 4.17 : Caractéristiques  $J(V)$  et  $L(J)$  pour des  $\mu$ -OLED de différentes tailles.

Les densités de courant maximales observées sont dans l'ordre croissant des tailles d'échantillons  $3.00 \text{ kA}/\text{cm}^2$ ,  $5.99 \text{ kA}/\text{cm}^2$  et  $3.73 \text{ kA}/\text{cm}^2$ . Avec les échantillons non métallisés le maximum est à  $4 \text{ kA}/\text{cm}^2$  pour une excitation de  $120 \text{ V}$  et un échantillon de  $80 \times 120 \mu\text{m}^2$ . On note là les bénéfices de la métallisation qui permettent de réduire d'un facteur 3 le niveau d'excitation requis pour des densités de courant comparables à ceux des échantillons non métallisés. La densité de courant  $5.99 \text{ kA}/\text{cm}^2$  constitue à l'heure actuelle un record mondial.

Les caractéristiques  $L_{\text{max}}(J_{D_{\text{max}}})$  présente une caractéristique atypique en  $S$  avec un effet de seuil qui peut être attribué à un effet de saturation de l'intensité lumineuse au-delà de  $1.7 \text{ kA}/\text{cm}^2$  qui peut être attribué à une saturation de l'amplificateur de la photodiode. Les valeurs maximales de luminance malgré leur record ( $3.46 \times 10^6 \text{ cd}/\text{cm}^2$ ,  $3.63 \times 10^6 \text{ cd}/\text{cm}^2$  et  $4.11 \times 10^6 \text{ cd}/\text{cm}^2$ ) ne sont donc pas significatives du phénomène physique que nous cherchons à observer. Ces résultats sont une deuxième indication de la nécessité de reconduire l'expérience avec une autre photodiode à avalanche non seulement plus rapide mais aussi en prenant soin de ne pas la saturer.

#### 4.5.7. Rendement quantique instantané

On définit le rendement quantique comme le rapport du nombre de photons émis au nombre d'électrons injecté. En régime d'impulsion, sa valeur instantanée peut être estimée en utilisant la relation :

$$EQE(t) = K \frac{L(t)}{J_d(t)} \quad \text{Eq. 4.3}$$

où  $L(t)$  est la luminance instantanée exprimée en  $cd/m^2$ ,  $J_a(t)$  la densité de courant instantanée en  $A/cm^2$ , et  $K$  un coefficient issu des calculs de calibration (0,00014157).

Partant des mesures expérimentales de luminance et des densités de courant calculées précédemment, on obtient donc, à un facteur près, les courbes d'efficacité quantique instantanée, représentées sur la Figure 4.18 pour les tensions d'excitation de 30V et 40V, en divisant les courbes de luminance par les courbe de densité de courant sur la fenêtre temporelle de l'impulsion (voir Figure 4.15).

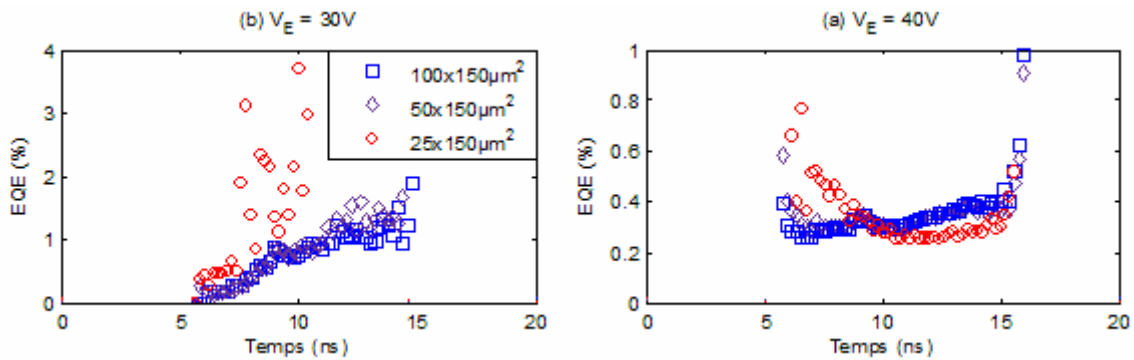


Figure 4.18 : Efficacité quantique instantanées à 30V et 40V pour des  $\mu$ -OLEDs de différentes tailles.

Il apparaît que l'efficacité ne dépend pas de la taille des échantillons. Par ailleurs, les points isolés les plus hauts observés en début ou en fin d'impulsion sont à considérer comme du bruit car liés au fait que le courant passe par zéro sur les flancs de l'impulsion. Les valeurs typiques révélées par ces tracés sont consignées dans le tableau ci-après :

Tableau 4.8 : Valeur typique estimées d'efficacités quantique externe et interne

	30V			40V		
	<i>echB1</i> (100 $\mu$ m)	<i>echB2</i> (50 $\mu$ m)	<i>echB3</i> (25 $\mu$ m)	<i>echB1</i> (100 $\mu$ m)	<i>echB2</i> (50 $\mu$ m)	<i>echB3</i> (25 $\mu$ m)
<i>EQE</i>	0.2 – 1.3			0.30 – 0.50		
<i>IQE</i>	1 – 6.5			1.5 – 2.5		

## CONCLUSION

Dans ce chapitre, ont été présentés les résultats de mesures expérimentales effectuées sur des  $\mu$ -OLEDs métallisées et non-métallisées de différentes tailles (25 $\times$ 150 $\mu m^2$ , 50 $\times$ 150 $\mu m^2$ , 100 $\times$ 150 $\mu m^2$ ).

Une première étape à consister à vérifier par des mesures de qualification que les échantillons réalisés présentaient bien les propriétés électriques et optiques voulues. Ainsi après avoir vérifié que l'hétéro structure organique déposée présentait bien les caractéristiques électriques  $I(V)$ , optique  $L(I)$  et le spectre  $S(\lambda)$  attendus, nous avons

vérifié à l'analyseur de réseau que les électrodes CPW sur ITO présentait bien une impédance caractéristique  $50\Omega$ . De même, les résistances de mesure intégrées ont été mesurées à  $13\Omega$ , les capacités équivalentes des OLED à  $28\text{nF}/\text{cm}^2$ , et les résistances séries à  $45\Omega$  pour les échantillons non métallisés, et  $20\Omega$  pour les échantillons métallisés. Ces valeurs sont des paramètres importants du modèle électriques équivalent indispensable dans les étapes suivantes de la démarche.

Les échantillons une fois validés sont ensuite soumis à des impulsions électriques afin d'étudier leurs réponses électriques et optiques. Ils sont d'abord caractérisés pour différentes durées d'impulsions puis pour différentes amplitudes d'excitation. Des impulsions de durée comprises entre  $2.5\text{ns}$  et  $20\text{ns}$  ont été appliquées aux  $\mu$ -OLED et des impulsions lumineuses de même durée ont été détectées ce qui confirme la rapidité de ces composants. Pour des impulsions inférieures à  $10\text{ns}$  les réponses optiques semblent pourtant ne pas répondre aussi efficacement qu'au delà de  $10\text{ns}$ . Les études suivantes sont donc faites à cette valeur charnière de  $10\text{ns}$  de largeur d'impulsions à commencer par une étude en fonction de l'amplitude comprise entre  $10\text{V}$  et  $50\text{V}$  pour les échantillons métallisés et jusqu'à  $120\text{V}$  et pour les non métallisés. Une étude spectrale résolue temporellement vient confirmer que pendant toute la durée de l'impulsion, le spectre instantané d'émission de l'OLED reste similaire à son spectre d'émission en régime d'excitation continu à l'exception d'une bande d'émission sur le flanc rouge du spectre. Ce résultat permet de valider des calculs en régime instantané de l'intensité lumineuse et de la luminance.

L'étape suivante a consisté à confronter les mesures et le modèle théorique afin de le valider et accéder au calcul du courant effectif  $i_D$  circulant réellement dans l'OLED et responsable de l'émission lumineuse. Pour accéder au dernier, mais très important paramètre  $R_d$  du modèle, trois méthodes de détermination de la résistance dynamique ont été mis en œuvre ; la première par extrapolation de la caractéristique  $I(V)$  en continu, la deuxième par reconstruction  $I(V)$  en régime d'impulsion, et la troisième par rapprochement numérique avec la fonction de transfert du modèle. Ces trois approches donnent des résultats différents qui définissent une plage de la résistance dynamique assez large comprise entre  $24\Omega$  et  $390\Omega$  par exemple pour une tension d'excitation de  $40\text{V}$ . A partir de ces plages de  $R_d$  et des autres paramètres  $R_s$ ,  $R_c$  et  $C$ , il a tout de même été possible d'identifier des valeurs de  $R_d$  qui permette de recalculer numériquement le signal mesuré avec un bon accord qualitatif. Sur cette base les densités de courants crête et les constantes de temps des composants ont pu être extraites. Ainsi, un premier ensemble de réponses électriques et optiques de  $\mu$ -OLED de  $100 \times 150 \mu\text{m}^2$  métallisées a été analysé d'où il a pu être déduit une constante de temps de  $110\text{ps}$  et un courant de  $2\text{kA}/\text{cm}^2$ . En généralisant cette méthode, les mesures de courant ont montrés des pics de densité de

courant jusqu'à  $6\text{kA}/\text{cm}^2$  pour des échantillons métallisés. La luminance crête maximale mesurée culmine à  $4.11 \times 10^6 \text{cd}/\text{m}^2$ . A partir de ces résultats et en calculant le rapport des signaux optiques et électriques, il est possible de construire un rendement quantique externe instantané autour de 0.7% à 30V ou de 0.4% à 40V, correspondant respectivement à 3.5% et 2% de rendement quantique interne. Avec ces valeurs d'efficacité quantique et de courant, nous allons voir s'il est possible d'atteindre les seuils laser de la littérature.

## REFERENCES

---

1. N. C. Giebink et S. R. Forrest, « Quantum efficiency roll-off at high brightness in fluorescent and phosphorescent organic light emitting diodes », *Physical Review B*, vol. 77, n° 23, juin 2008.
2. K. Hayashi et al., « Suppression of roll-off characteristics of organic light-emitting diodes by narrowing current injection/transport area to 50 nm », *Applied Physics Letters*, vol. 106, n° 9, p. 093301, mars 2015.
3. L. Zeng et al., “Electrical and optical impulse response of high-speed micro-OLEDs under ultrashort pulse excitation,” *IEEE Transactions on Electron Devices*, vol. 64, n° 7, pp. 2942–2948, Jul. 2017.
4. V. G. Kozlov et al., “Structures for organic diode lasers and optical properties of organic semiconductors under intense optical and electrical excitations,” *IEEE Journal of Quantum Electronics*, vol. 36, n° 1, pp. 18–26, 2000.



## CONCLUSION ET PERSPECTIVES

### LE BILAN

Dans le cadre de ce travail, nous avons combiné l'électronique hyperfréquence et opto-électronique organique pour réaliser et étudier expérimentalement les propriétés électriques et optiques de micro-OLED en régime d'excitation électrique impulsionnelle tout-ou-rien, à l'échelle sub-nanoseconde et à haute densité de courant.

Les objectifs visés étaient de réduire le temps de réponse du composant pour lui permettre de répondre à des impulsions de durée entre  $0.2ns$  à  $20ns$ , et d'atteindre des densités de courant proches des valeurs équivalentes aux seuils laser les plus bas rapportés dans la littérature en pompage optique.

Notre démarche scientifique a été structurée en quatre parties qui correspondent aux quatre chapitres de ce manuscrit. La première étape de la démarche a été consacrée à quelques rappels théoriques. Dans le premier chapitre nous avons rappelé dans un premier temps les propriétés optiques et électriques des semi-conducteurs organiques qui conditionnent les mécanismes de d'injection et de transport des charges et de transfert d'énergie et de recombinaison. Dans un deuxième temps nous avons rappelé les bases sur les lignes de transmission en hyperfréquence, notamment les questions d'impédance caractéristique, d'adaptation d'impédance et de réflexion, ce qui nous a permis d'identifier la ligne coplanaire (CPW) comme un candidat intéressant pour réaliser des électrodes rapides. Ce choix pour la ligne coplanaire a été motivé pour sa compatibilité avec nos substrats à une seule face conductrice et pour son caractère large bande.

Nous sommes ensuite passés à la deuxième étape qui a consisté à établir un modèle électrique dynamique d'OLED spécifique au mode d'excitation tout-ou-rien, qui prenne en compte à la fois les effets capacitifs du composant et sa caractéristique courant tension à travers une résistance dynamique variable. La mise en équation du dit modèle dans le deuxième chapitre nous a permis d'identifier et de présenter les paramètres clefs ( $R_s$ ,  $R_d$ ,  $C$ ) permettant d'accéder à son temps de réponse et au courant utile à l'électroluminescence ( $i_D$ ). Nous avons poursuivi avec le dimensionnement du circuit d'excitation, avec pour objectif de réaliser une résistance de charge de  $11\Omega$  et des lignes d'électrodes d'impédance caractéristique  $50\Omega$  pour garantir la continuité d'impédance avec les câbles d'alimentation et le transfert efficace des impulsions d'excitation vers le composant. Cette étape s'est terminée avec le calcul des dimensions géométriques des motifs des lignes et de la résistance de charge à graver dans l'ITO.

L'étape suivante, la troisième, a consisté à fabriquer des composants sur la base des dimensionnements précédents et de manière à satisfaire les exigences précédemment

évoquées de faible temps de réponse et de continuité d'impédance. Le troisième chapitre a donc été consacré à la fabrication de micro-OLED sur électrodes coplanaires, et à la description de leurs outils de caractérisation. Il s'est agit d'abord de définir l'hétéro structure organique et de décrire les outils technologiques de fabrication et de conditionnement des composants, puis de préciser les conditions d'acquisition et de traitement des mesures. Deux générations de composants ont pu être produits. Une première directement réalisés sur de l'ITO gravé sur substrat de verre et une deuxième sur de l'ITO gravé et métallisé par une surcouche d'Or. La présentation des résultats issus de diverses mesures de qualification et de caractérisation expérimentale a fait l'objet de la quatrième et dernière étape de notre démarche.

Le quatrième chapitre a donc été consacré, tout d'abord à la validation des étapes de structuration des circuits (gravure des lignes / électrodes et intégration des résistance de charge), ensuite à la vérification des composants réalisés à travers des test de qualification, et enfin aux mesures de caractérisation proprement dites et leurs traitements et analyses à la lumière du modèle électrique équivalent établi au deuxième chapitre.

Des mesures à l'analyseur de réseau vectoriel ont montré que les lignes coplanaires gravées sur ITO et métallisées présentaient bien une impédance caractéristique  $50\Omega$ . Les résistances de charge intégrées ont été quand à elle mesurées à  $13\Omega$ , soit 20% de plus que la valeur dimensionnée. Les paramètres  $C$  et  $R_s$  du modèle électrique équivalent ont été également mesurés par les mêmes moyens respectivement à  $28nF/cm^2$  et  $45\Omega$  pour les échantillons non métallisés ou  $20\Omega$  pour les échantillons métallisés. Après des tests de qualification en continu de caractéristique  $I(V)$  et de spectre sur les composants réalisés, les réponses impulsionnelles électriques et optiques ont été étudiées. Tout d'abord en fonction de la durée de l'impulsion, variable entre  $2.5ns$  et  $20ns$ , pour des impulsions d'excitation électrique de  $40V$ . Il en est ressorti que dans tous les cas, les composants répondent tous électriquement et optiquement par des impulsions de même durée ; le cas des  $2.5ns$  correspond à ce jour aux impulsions les plus courtes au regard de la littérature. Les études suivantes ont été menées avec des impulsions de durée  $10ns$ , notamment celle en fonction de l'amplitude des impulsions, variable entre  $10V$  et  $50V$  ou  $120V$  pour les échantillons métallisés ou non métallisés respectivement. Ainsi, par trois approches différentes, il a été possible de définir une plage de valeurs de la résistance dynamique  $R_d$  allant de  $24\Omega$  à  $390\Omega$  dans le cas d'une amplitude d'excitation de  $40V$  par exemple, puis d'identifier celle qui permet de recalculer numériquement le signal mesuré avec un bon accord. Sur cette base les densités de courants crêtes et les constantes de temps des composants ont pu être extraites. On arrive ainsi, pour des échantillons métallisés de  $\mu$ -OLED de  $100 \times 150 \mu m^2$ , à en déduire une constante de temps de  $110ps$ , équivalent à un temps de réponse de  $330ps$ , des pics de densité de courant jusqu'à  $6kA/cm^2$  et une luminance crête à  $4.11 \times 10^6 cd/m^2$ . Cela

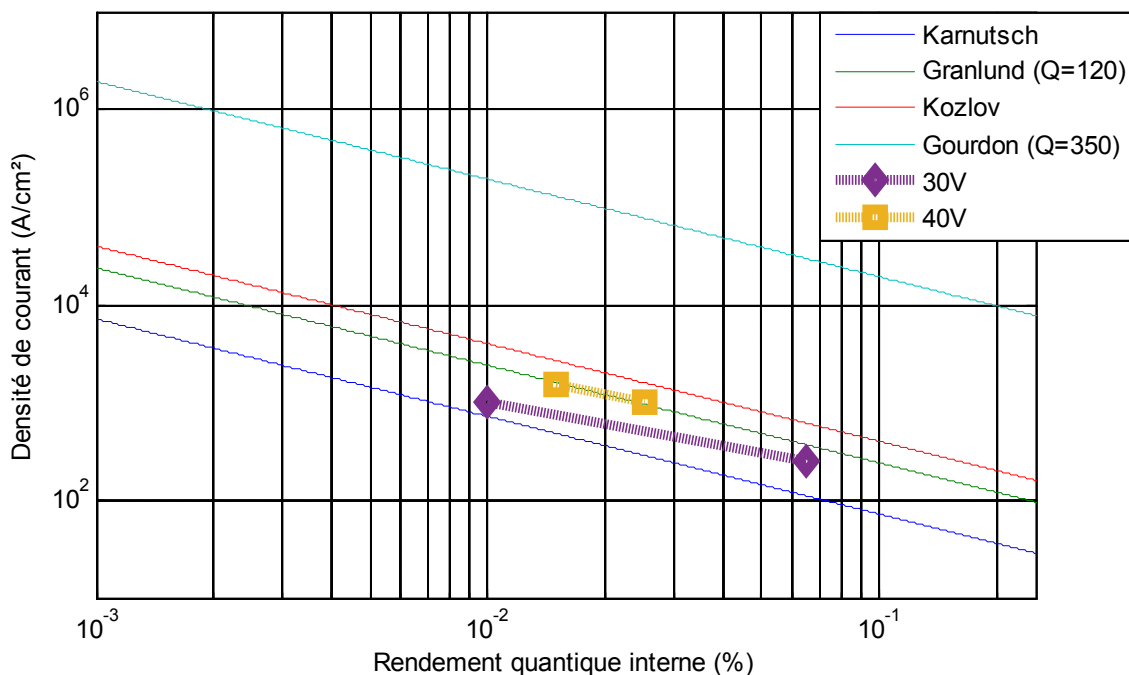


constitue une augmentation d'un facteur 1.6 de la densité de courant et une réduction d'un facteur 10 pour les durées d'impulsion, par rapport aux précédents travaux de l'équipe.

Le rapport des signaux optiques et électriques a permis de calculer un rendement quantique interne instantané entre 1.5% et 2.5% à 40V ou entre 1% et 6.5% à 30V. En plaçant ces valeurs d'efficacité quantique et de densité de courant sur la figure 0.2 de l'introduction, nous pouvons nous positionner en terme de capacité d'excitation électrique pour atteindre les seuils laser de la littérature, voir figure ci-dessous. Pour une amplitude d'excitation de 40V, nous nous situons au niveau du seuil laser équivalent de l'expérience rapportée par Granlund, le deuxième seuil le plus bas rapporté, obtenu avec un laser dont la cavité est faite d'un miroir multicouche. A 30V, nous nous situons au dessus du seuil laser équivalent rapporté par Kartnusch, obtenu avec une cavité DFB.

Nos résultats nous semblent ouvrir la possibilité d'exciter électriquement des lasers organiques en prenant en compte les contraintes rappelées dans l'introduction avec :

- des rendements quantiques très réalistes ;
- des durées d'impulsions inférieures à 20ns .



*Positionnement de nos résultats par rapport aux seuils les plus faibles pour des amplitudes d'excitation de 30V et 40*

## LES PERSPECTIVES

Les résultats obtenus dans le cadre de cette thèse sont encourageants pour la suite de cette quête vers la réalisation de la première diode laser organique. Nous proposons ici quelques pistes pour réaliser les dernières étapes qui concernent la constante de temps optique et la cavité laser.

Notre étude a semblé montrer que la constante de temps optique est supérieure à la constante de temps électrique. Pour trancher ou pour la réduire, nous proposons d'explorer deux pistes :

- Sur le plan de la caractérisation, il serait judicieux d'utiliser un photo détecteur plus rapide ; il serait également intéressant de réduire d'avantage la durée des impulsions d'excitation avec des fronts plus raides afin de gommer l'effet du générateur sur les mesures. Cela aurait aussi pour effet bénéfique de maximiser la densité d'excitation et de luminance dès le début de l'impulsion.
- Sur le plan de la fabrication, d'autres empilements d'hétéro structure organique pourraient être testés de manière à optimiser spatialement et temporellement la recombinaison des porteurs de charges au sein de la couche émettrice.

Et pour poursuivre la quête vers la diode laser organique, le point le plus important consisterait à intégrer une cavité laser à la micro-OLED rapide développée dans le cadre de ce travail. Pour éviter que le seuil laser de cette cavité soit augmenté par la présence d'électrodes métalliques sources d'absorption, il conviendrait d'intégrer une ou des microcavités laser à l'écart de la zone active mais de manière à ce qu'elle soit « pompée » par celle-ci. A cet effet, les réseaux DFB 1D comme celui de l'expérience de Karnutsch par exemple, seraient parfaitement compatibles avec la géométrie des composants réalisés dans ce travail, car faciles à intégrer par gravure dans l'anode d'ITO comme schématisé sur la figure ci-après.

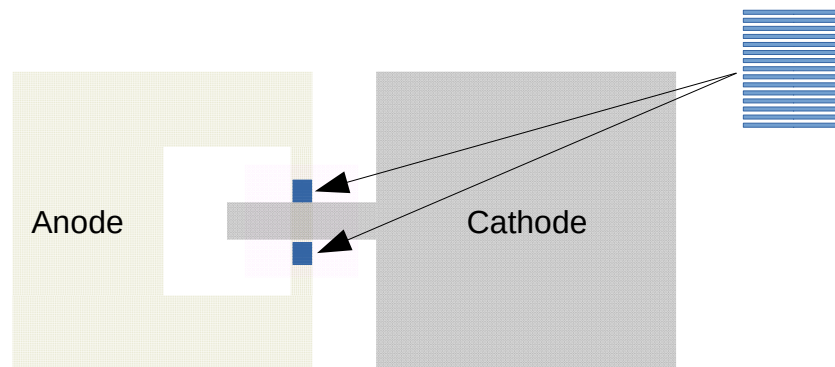


Illustration de l'intégration d'un réseau DFB mixte de premier et second ordre autour de la zone active

## ARTICLES, CONFERENCES, BREVETS

### ARTICLES

1. Lei Zeng, **Alex Chamberlain Chime**, Mahmoud Chakaroun, Souheil Bensmida, Homère Nkwawo, Azzedine Boudrioua, and Alexis P. A. Fischer, « Electrical and Optical Impulse Response of High-Speed Micro-OLEDs Under UltraShort Pulse Excitation », IEEE Transactions on Electron Devices, vol. 64, n° 7, p. 2942-2948, juill. 2017.
2. **Alex C CHIME**, Alexis FISCHER, Souheil BENSMIDA, Mahmoud CHAKAROUN, Min W LEE, Homère NKWAWO, « Electrical modelling and design of ultra-fast micro-OLED with coplanar wave-guided electrodes in ON-OFF regime », in press, Organic Electronics, Dec. 2017.

### CONFERENCES

1. **A. Chime**, A. Fischer, L. Zeng, M. Chakaroun, M.W. Lee, S. Bensmida, H. Nkwawo et A. Boudrioua, « Réponse de micro-OLEDs soumises à des impulsions électriques nanoseconde à haute densité de courant », Oral, Optique 2016, juill. 2016, Bordeaux.
2. **A. Chime**, L. Zeng, M. Chakaroun, M. W. Lee, S. Bensmida, H. Nkwawo, A. P. A. Fischer et A. Boudrioua, « Caractérisation de micro-oleds sous le régime des impulsions électriques nanosecondes », CNRIUT'2016, juin 2016, Nantes.
3. L. Zeng, **A. Chime**, M. Chakaroun, M. Lee, A. Fischer, H. Nkwawo et A. Boudrioua, « Effet thermique dans les  $\mu$ -OLED en régime impulsif », Poster, Optique 2016, juill. 2016, Bordeaux.
4. **Alex CHIME**, Homère NKWAWO, Raphaël GOMA, Mahmoud CHAKAROUN, Min LEE, Alexis FISCHER, Azzedine BOUDRIOUA, « CARACTERISATION ELECTRIQUE EN REGIME IMPULSIONNEL LARGE BANDE DES COMPOSANTS OPTOELECTRONIQUES ORGANIQUES », Poster, JNPO 2014, Strasbourg.

### BREVETS

1. EP17306292.6, « MICRO ORGANIC OPTO-ELECTRONIC DEVICE CONFIGURED FOR HIGH CURRENT DENSITY », 28 septembre 2017
2. EP17306292.8, « MICRO ORGANIC OPTO-ELECTRONIC DEVICE CONFIGURED FOR HIGH CURRENT DENSITY », 28 septembre 2017



## ANNEXE : FICHE DE PROCEDURE DE GRAVURE DE L'ITO

### A.1. IDENTIFICATION DE LA SURFACE METALLISEE

L'échantillon initial est un substrat de verre dont l'une des faces est recouverte d'ITO. En l'état, il ne présente aucune marque permettant d'identifier facilement la face métallisée. Il est impératif de l'identifier et de faire un marquage avant utilisation pour écarter tout risque de confusion à une étape intermédiaire du processus de fabrication d'OLED.

#### Consignes

- Repérer, par un test de continuité au multimètre, la surface conductrice (ou métallisée) du substrat.
- Procéder au marquage : il est courant de marquer la face utile d'un substrat de verre en biaisant l'angle nord-ouest (en haut : à droite) de celui-ci lorsque la face utile est orientée vers le haut.

### A.2. NETTOYAGE INITIAL

Le nettoyage initial se fait par une succession de bains à ultrason de solvants organiques tels que l'acétone, l'éthanol, l'isopropanol, et d'eau déionisée.

#### Consignes

- Bain d'acétone : 10 minutes
- Bain d'éthanol : 10 minutes
- Bain d' isopropanol : 10 minutes
- Séchage à la soufflette d'azote

### A.3. PHOTOLITHOGRAPHIE

La photolithographie se fait en trois étapes : l'enrésinement, l'insolation et le développement.

#### A.3.1. Enrésinement

Pour la gravure de l'ITO, on se sert d'une résine épaisse (AZ1518) déposée à la tournette sur le substrat de verre. La vitesse de dépôt permet de fixer l'épaisseur. Une étape de recuit doit se faire immédiatement après le dépôt.

Matériel : tournette, résine AZ1518, pipette, 01 plaque chauffante, 01 minuteur, 01 pince

#### Consignes

- Préparation
  - Procéder à la programmation de la tournette (vitesse = 4000 tr / min)
  - Régler la température (100°C) et mettre en marche la plaque chauffante

- Programmer le minuteur pour 1min
- Enduction centrifuge
  - Installer le substrat au centre la tournette
  - Déposer quelques gouttes de résine sur le substrat
  - Lancer le programme de la tournette
  - Récupérer le substrat
- Recuit
  - Placer le substrat enrésiné sur la plaque chauffante et activer le minuteur
  - Récupérer le substrat après une minute

### **A.3.2. Insolation (Aligneur de masque MJB4)**

Matériel : Aligneur de masque MJB4, masque, pince

#### Consignes

- Préparation
  - Démarrer l'aligneur de masque
  - Vérifier, par mesure, la puissance de la lampe à 365nm et à 405nm (on est normalement autour de 12 mW/cm<sup>2</sup> –et 17 mW/cm<sup>2</sup> respectivement)
  - Installer le masque
  - Fixer le temps d'insolation = 12s
  - Fixer les autres paramètre de l'aligneur : type de contact, type d'exposition, ...
- Insolation
  - Installer l'échantillon sur le porte échantillon
  - Procéder au réglage du WEC
  - Procéder à l'alignement
  - Insoler
  - Récupérer l'échantillon

### **A.3.3. Développement**

Le développement se fait dans une solution de AZ351B diluée dans l'eau. Prendre un volume de AZ351B pour quatre volumes d'eau.

Matériel : Solution de AZ351B, Eau, 02 béchers, 01 éprouvette, 01 minuteur, 01 pince

#### Consignes

- Préparation
  - Préparer dans un bécher la solution AZ351B : H2O (1 : 4)
  - Prévoir de l'eau dans le deuxième bécher
- Développement

- Programmer le minuteur pour 30s
- Plonger le substrat dans la solution de développement et activer le minuteur
- Transférer immédiatement le substrat dans l'eau au terme des 30s pour stopper le développement
- Séchage
  - Programmer le minuteur pour 1min
  - Sécher le substrat à la soufflette d'azote
  - Faire un recuit à 100°C pendant environ 1 min.

#### **A.4. GRAVURE (ICP)**

Matériel: Bâti de gravure ICP, pâte à vide, 01 pince

##### Consignes

- Préparation de la chambre de gravure
  - Effectuer un « **clean** » de la chambre à vide ;
- Gravure
  - Installer le substrat dans la chambre, face métallisée vers le haut
  - Lancer la recette **201706\_CHIME...**
  - Décharger le substrat
- Nettoyage
  - Enlever à l'acétone les traces de résine et de pâte à vide sur le substrat,
  - Reprendre le processus de nettoyage initial du substrat (voir paragraphe A.1)

## RESUME

---

Ce travail de thèse explore l'excitation électrique de micro-OLEDs en régime d'impulsion afin d'évaluer la possibilité d'atteindre le seuil laser dans les diodes laser organiques qui restent encore à démontrer. Il s'agit d'identifier des solutions scientifiques et techniques ouvrant la voie vers des densités d'excitations électriques équivalentes aux seuils laser observés en pompage optique. Dans la littérature, les seuils les plus bas sont équivalents à des densités de courant entre 0.72 et 4kA/cm<sup>2</sup> si on suppose une efficacité quantique externe de 1%. De telles densités de courant imposent un régime d'excitation électrique impulsif pour s'affranchir des risques de destructions par effet thermique et des pertes par annihilation singulet-triplet dès lors que l'on travaille avec des durées d'impulsion de l'ordre de la nanoseconde. Et pour espérer des réponses électriques et optiques efficaces à de telles durées d'impulsions, il est proposé ici de combiner l'électronique hyperfréquence et l'optoélectronique organique. A cet effet, un modèle électrique équivalent de l'OLED permettant d'accéder à son temps de réponse en mode tout-ou-rien est développé. De plus, des électrodes spécifiques sont dimensionnées et structurées sous forme de lignes coplanaires d'impédance caractéristique 50Ω afin de maîtriser l'impédance du circuit d'excitation et d'assurer le transfert du maximum d'énergie de l'impulsion d'excitation vers celui-ci. Après dépôts de l'hétéro-structure organique basée sur le système hôte-dopant Alq3:DCM, les composants ainsi réalisés sont caractérisés électriquement et optiquement avec différentes techniques par analyse vectorielle, en régime continu et en régime d'impulsion. En régime d'impulsion de très courtes durées (2.5~20ns) et à faible taux de répétition (100Hz), des temps de réponse de 330ps et des densités de courant maximales entre 4 et 6kA/cm<sup>2</sup> ont été mesurés alors que le maximum de luminance culmine à 4.11x10<sup>6</sup> cd/m<sup>2</sup>.

**Mots clés :** micro-OLED, électrodes coplanaires, impulsions nanosecondes, haute densité de courant

## ABSTRACT

---

This thesis explores the pulsed electrical excitation of micro-OLEDs in order to evaluate the possibility of reaching the laser threshold in organic laser diodes that have not yet been demonstrated. The main goal is the identification of the scientific and technical solutions towards high electrical excitation current densities equivalent to the laser thresholds observed under optical pumping. In the literature, the lowest reported thresholds are equivalent to current densities between 0.72 and 4kA/cm<sup>2</sup>, assuming an external quantum efficiency of 1%. Such current densities imply a pulsed electrical excitation regime to prevent the risks of device breakdown by Joule heating effects and to avoid losses by exciton annihilation processes, as long as the pulse duration is in the nanosecond range. To expect efficient electrical and optical responses to such pulse durations, it is suggested to combine microwave electronics and organic optoelectronics. For this purpose, an equivalent electrical model of the organic light emitting device, allowing access to its on-off mode time response, is developed. Additionally, specific electrodes are designed and patterned in the coplanar waveguide configuration with characteristic impedance of 50Ω, in order to control the impedance of the excitation circuit and to ensure the maximum energy transfer of the excitation pulse to the device. After deposition of organic hetero-structure based on the Alq3:DCM host-guest system, the device is characterized electrically and optically with different techniques by vector network analysis, in continuous mode and in pulse mode. In pulse excitation regime with very short pulse durations (2.5~20ns) and low repetition rate (100Hz), time response of 330ps and maximum current densities between 4 and 6kA/cm<sup>2</sup> are recorded while the maximum of luminance peaks at 4.11x10<sup>6</sup> cd/m<sup>2</sup>.

**Key words :** micro-OLED, coplanar electrodes, nanosecond scale pulse width, high current density