

بهینه‌سازی تزریق حفره با استفاده از لایه ترکیبی اکسید گرافن و اکسید مولیبدن جهت افزایش طول عمر دیودهای نورتاب آلی

حسن اله داغی^{۱*}، محمد زیرک^۱

^۱گروه فیزیک، دانشکده علوم پایه، دانشگاه حکیم سبزواری، سبزوار، ایران.

تاریخ ثبت اولیه: ۱۳۹۷/۰۱/۲۹، تاریخ دریافت نسخه اصلاح شده: ۱۳۹۷/۰۸/۲۸، تاریخ پذیرش قطعی: ۱۳۹۸/۰۲/۱۷

چکیده با توجه به بحران انرژی در عصر کنونی، تولید ادوات در زمینه مصرف انرژی باید به سمت و سویی حرکت کند که از نظر مصرف کاملاً بهینه و از نظر طول عمر تا حد ممکن زیاد باشد که خود هزینه‌های تولید را کاهش می‌دهد. دیودهای نورتاب آلی (OLED) نسل جدیدی از ادوات نورتاب هستند که از مزایای ویژه‌ای نسبت به دیگر چراغ‌ها برخوردار هستند. نازک و سبک بودن، انعطاف‌پذیر بودن، شفاف بودن و راحتی در ساخت از جمله این ویژگی‌ها است. این دیودها متشکل از لایه‌های تزریق‌کننده حفره، الکترون و لایه نورتاب هستند. وظیفه اصلی لایه‌های تزریق‌کننده الکترون و حفره، ارسال حامل بار به لایه نورتاب است. بازترکیب در لایه نورتاب صورت می‌پذیرد که منجر به تولید نور می‌شود. در این کار تمرکز اصلی روی بهینه کردن تزریق حفره به منظور افزایش طول عمر دیودها قرار داده شده است. از ترکیبات متفاوت محلول اکسید مولیبدن (MoOx) و گرافن اکساید (GO) در ساخت لایه‌ی تزریق‌کننده حفره استفاده شد. بیشترین بازده مربوط به ترکیب نسبت ۱:۱ (نسبت حجمی) بود که به بازده توان ۷٫۵ lm/W توانست برسد. طول عمر دیود بهینه شده با دیود استاندارد ساخته شده با PEDOT:PSS مقایسه شد به طوری که نسبت به آن حدود ۳۰ برابر افزایش داشت.

کلمات کلیدی: دیود نورتاب آلی، اکسید مولیبدن، اکسید گرافن، طول عمر.

The Optimization of Hole Injection using Composite layer Containing of Graphene Oxide/Molybdenum Oxide in order to Enhance in Lifetime of Organic Light Emitting Diode

Hassan Alehdaghi^{*1}, Mohammad Zirak²

¹Department of physics, Hakim Sabzevari University, Sabzevar, Iran.

Abstract As to the crisis of energy in the recent years, devices manufacturing industry must be go toward the optimizing of energy consumption and increment in the lifetime leading to reduce production cost. Organic light emitting diodes (OLED) are one of the modern generations in the lighting industry that have many advantages such as being light and thin, flexibility, ability to be transparent, and easy to fabricate. These devices consist of hole injecting layer/electron and emissive layer. The main role of hole/electron injection layers is injection of charge carriers to emissive layer where electrons and holes recombine and create photons. In this work we focused on optimization of hole injection in order to increase lifetime of device. We used the different composition of molybdenum oxide (MoOx) and graphene oxide (GO) in hole injection layer. The maximum efficiency of the devices owned to the composite thin film with 1:1 value ratio (MoOx:GO) that it could be reached to 7.5 lm/W. The lifetime of the optimization of composite was compared to the standard device fabricated with PEDOT:PSS so that the results showed a 30 times enhancement in lifetime.

Keywords: OLED, MoOx, GO, lifetime.

۱- مقدمه

در میان چراغ‌های حالت جامد، دیودهای نورتاب آلی ($^1\text{OLED}$) بنابر مشخصه‌های منحصر به فرد از جایگاه ویژه‌ای برخوردار هستند [۱-۳]. مهم‌ترین مزیت این قطعات سبک بودن آنها می‌باشد [۴]. ساخت آسان، قابلیت ساخت شفاف و انعطاف‌پذیری از دیگر ویژگی‌های مهم آنها است. این دیودها متشکل از چندین لایه‌ی نازک از قبیل آند، کاتد، تزریق‌کننده‌های حامل بار و لایه نورتاب می‌باشند که اغلب ضخامت هر یک تقریباً زیر ۱۰۰ nm است. الکترون‌ها از آند که در لایه ایندیوم قلع‌اکساید (^2ITO) است و حفره‌ها از کاتد که فلزاتی با تابع کار پایین هستند به سیستم وارد می‌شوند. بعد از اینکه حامل‌های بار از لایه‌های تزریق‌کننده الکترون/حفره وارد لایه نورتاب شدند، با هم بازترکیب می‌شوند و تولید نور می‌کنند. در اکثر OLED ها از ترکیب لایه لیتیوم فلوراید و آلومینیوم (LiF/Al) به عنوان کاتد-تزریق‌کننده الکترون و از پلی ($^3\text{P}^3\text{و}^4$) اتلین دی اکسی تیوفن-پلی (استایرن دی سولفون) (PEDOT:PSS) به عنوان لایه تزریق‌کننده حفره استفاده می‌شود [۵]. دو تا از مهم‌ترین چالش‌های این نوع قطعات، بازدهی و پایداری است که با انتخاب لایه‌های مناسب می‌توان بر این مشکلات فائق آمد. گزارشاتی وجود دارد که در آنها به معایب PEDOT:PSS اشاره شده است که سبب کاهش طول عمر دیودها می‌شود [۶و۷]. جذب رطوبت، تجزیه شیمیایی ترکیب، خاصیت اسیدی داشتن و عبور عنصر ایندیوم از آن، از جمله معایب اصلی این ماده در کاهش طول عمر این نوع دیودها می‌باشد [۸]. به علت پایداری بالای اکسیدهای فلزی، به‌تازگی استفاده از آنها در ادوات الکترونی مرسوم شده است [۹-۱۱]. در این بین، اکسیدهای فلزی که به صورت شیمیایی از محلول ساخته می‌شوند به دلیل ساخت آسان‌تر، محبوب‌تر هستند [۱۲و۱۳]. چن^۳ و همکاران با استفاده از وانادیوم اکساید ساخته شده از محلول شیمیایی توانستند لایه انتقال‌دهنده حفره‌ای معرفی کنند که به خوبی PEDOT:PSS کارا و موثر بود [۱۴]. در گزارشی دیگر کیم^۴ و همکارانش با استفاده از

لایه ترکیبی اکسید مولیبدن و PEDOT:PSS به بازده قابل قبولی از LED رسیدند [۱۵]. علاوه بر آن می‌توان مشکل کم بودن طول عمر این گونه دیودها را به واسطه ورود لایه‌های اکسید فلزی تا حدی بهبود بخشید [۱۶و۱۷]. بولینک^۵ و همکاران در تحقیق خود از اکسید فلزی مولیبدن به صورت تبخیری جهت تزریق حفره استفاده کردند [۱۸]. اکسید فلزات واسطه به خصوص اکسید مولیبدن، با توجه به ترازهای انرژی که دارند، نیمه‌رسانای نوع n می‌تواند انتخاب خوبی برای تزریق حفره در این گونه دیودها به‌شمار آید. از طرفی دیگر گزارشاتی وجود دارد که استفاده گرافن اکساید می‌تواند باعث افزایش بازدهی و بهبود طول عمر شود [۱۹و۲۰]. با توجه به ترازهای انرژی که برای گرافن اکساید گزارش می‌شود، وجود این لایه باعث تزریق بهتر حفره به لایه نورتاب می‌شود. علاوه بر آن، اجازه عبور الکترون از لایه نورتاب و رسیدن به ITO را نیز نمی‌دهد [۲۰]. با توجه به بهبود بازده توسط اکسید مولیبدن و بهبود طول عمر با بکارگیری اکسید گرافن، می‌توان همزمان از این دو مزیت با استفاده از لایه ترکیبی $\text{MoO}_x:\text{GO}$ در دیود نورتاب استفاده کرد. یافت. یکی از نوآوری‌های این کار این است که با استفاده از این دو ماده، به صورت محلول، قادر به افزایش طول عمر دیود نورتاب شده که از مهم‌ترین چالش‌ها در این زمینه می‌باشد.

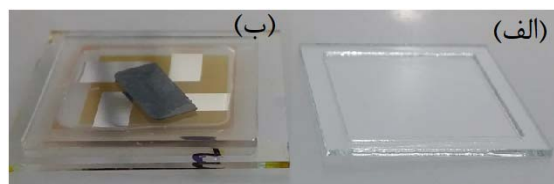
در این کار، محلول‌های مختلف از نسبت حجمی‌های متفاوت $\text{MoO}_x:\text{GO}$ ساخته شد. با استفاده از این محلول‌ها، لایه‌های نازک مربوطه روی ITO لایه‌نشانی شد. مشخصه‌های الکترونی شامل جریان-ولتاژ و بازده مربوط به این دیودها مقایسه شد. در نهایت دیود بهینه از نظر طول عمر با دیودهای مرجع مورد مقایسه قرار گرفت.

۲- روش تحقیق

لایه‌های ITO الگوسازی شده به ترتیب در حمام مافوق صوت که به ترتیب شامل استون، متانول و ایزوپروپانول بود، به مدت ۱۵ دقیقه شستشو داده شد. برای چسبندگی بهتر و پاک‌سازی هرگونه آلودگی آلی، لایه‌ها به مدت ۲۰ دقیقه تحت تابش فرابنفش (UV-C) قرار گرفتند و بعد از آن

¹ Organic light emitting diode² Indium tin oxide³ Chen⁴ Kim⁵ Bolink

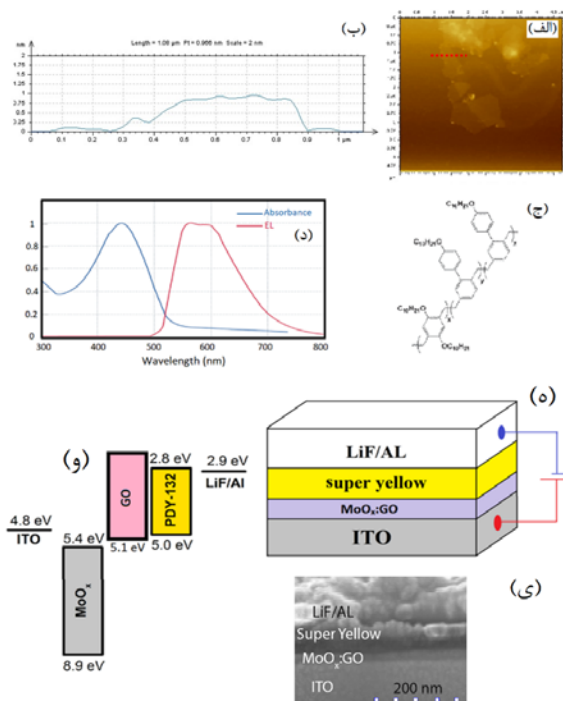
اکسیژن و رطوبت، چسبیده می‌شود. در شکل ۱ محفظه و LED کیسوله شده دیده می‌شود.



شکل ۱. شیشه استفاده شده برای کیسوله کردن (الف) نمونه LED کیسوله شده (ب).

از پروفایلومتر سورفتست برای تعیین ضخامت استفاده شد. برای اندازه‌گیری جریان-ولتاژ از یک منبع تغذیه مولتی-متردار کیتلی به مدل ۲۴۰۰ و برای اندازه‌گیری شدت نورتایی از دستگاه مینولتا ۱۰۰ استفاده شد. این دو دستگاه به صورت موازی به یکدیگر متصل بودند به طوری که قادر به اندازه‌هم-زمان جریان-ولتاژ نورتایی است. در اندازه‌گیری پایداری زمانی از دستگاه Polaronix M6000 of McScience در حالت جریان ثابت استفاده شد. شدت نورتایی اولیه LEDها روی حد 1000 cd/m^2 برای نمونه‌ها انتخاب شد.

۳- بحث و نتایج



شکل ۲. آنالیز AFM مربوط به گرافن اکساید (الف)، ضخامت ناحیه قرمز شده در شکل با رنگ قرمز (ب)، ساختار شیمیایی پلیمر نورتاب ابر زرد (ج)، منحنی جذب و الکترو لومینسانس پلیمر نورتاب (د)، طرح‌واره لایه-های تشکیل‌دهنده LED (ه)، ترازهای انرژی LEDهای ساخته شده نسبت به تراز انرژی خلأ (و) و تصویر سطح مقطع از دیود ساخته شده (ی).

بلافاصله به محفظه دستکش‌دار^۱ برده شدند. از ترکیبات مختلف محلول آمونیوم مولیبدن (چهارآبه) به غلظت 20 mM در محلول آب یونزدایی شده (DI) و محلول اکسید گرافن (تجاری) برای لایه تزریق‌کننده حفره استفاده شد. لایه‌های تزریق‌کننده حفره و لایه نورتاب توسط لایه‌نشانی چرخشی از محلول‌های خود به ترتیب با سرعت 4000 rpm و 800 rpm با ضخامت‌های به ترتیب 25 nm و 70 nm نشانده شدند. ترکیباتی که به عنوان لایه تزریق‌کننده حفره استفاده شده است در متن به صورت (X:Y) نشان داده شده است که عدد اول (X) بیانگر نسبت محلول مولیبدن در آب DI و عدد دوم (Y) نسبت محلول اکسید مولیبدن در محلول گرافن است. به دلیل اینکه محلول گرافن اکساید به تنهایی قابلیت لایه‌نشانی یکنواخت را نداشت مجبور به حل کمی آمونیوم مولیبدن در آن شد. منظور از لایه ۱:۲ به معنی این است که محلول 20 mM آمونیوم مولیبدن در آب DI با دو برابر محلول 20 mM آمونیوم مولیبدن در گرافن اکساید ترکیب شده است. نسبت‌های ۱:۰، ۲:۱، ۱۰:۱، ۵:۱ و ۱:۱ برای بررسی کارکرد و طول عمر دیودها ساخته شد. لایه‌های کامپوزیت MoO_x/GO پس از لایه‌نشانی در دمای 250°C به مدت ۳۰ دقیقه روی صفحه داغ در محفظه دستکش‌دار پخت شد. به منظور مقایسه پایداری زمانی LEDهای ساخته شده با یک نمونه استاندارد، دیودی با لایه تزریق‌کننده حفره PEDOT:PSS نیز ساخته شد. برای لایه‌نشانی لایه نورتاب از پلیمر ابر زرد^۲ با نام تجاری PDY-132 ساخت شرکت مرک استفاده شد که از غلظت پنج درصد جرمی در تولوئن بهره گرفته شد. برای لایه‌نشانی کاتد که در اینجا LiF/Al است، نمونه‌ها به محفظه خلا با فشار 10^{-7} torr برده شد. ضخامت LiF حدود 0.5 nm با آهنگ لایه‌نشانی $0.1 \text{ \AA/s}$ و ضخامت Al حدود 100 nm با آهنگ لایه‌نشانی $2.5 \text{ \AA/s}$ در نظر گرفته شد. بعد از ساخت، به منظور بررسی آزمون پایداری زمانی LEDها کیسوله شدند. برای کیسوله کردن از یک محفظه‌ی شیشه‌ای استفاده شد که به جداره داخلی آن ماده‌ی ضد رطوبت چسبیده می‌شود. این محفظه‌ی شیشه‌ای توسط چسب مخصوص روی LEDها، در محفظه‌ی دستکش‌دار (پر شده با گاز N_2)، برای جلوگیری از نفوذ

^۱ Glove box

^۲ Super Yellow

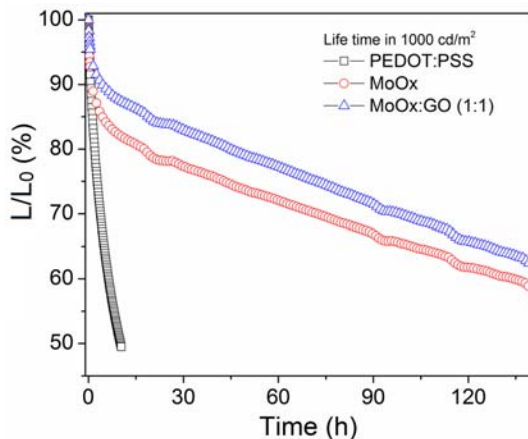
تزریق کننده‌ی حفره‌ی بهتری است. این شکل به خوبی نشان می‌دهد که وجود گرافن اکساید می‌تواند تزریق حفره‌ها را تسهیل کند. در قسمت (ی) تصویر میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM*) از سطح مقطع LED ساخته شده نمایش داده شده است. در این شکل لایه‌های LED به خوبی دیده می‌شود، گرچه لایه‌های گرافن اکساید موجود در اکسید مولیبدن دیده نمی‌شود که در SEM با این وضوح تصویر، انتظاری برای دیدن این لایه‌ها وجود ندارد.

به منظور بررسی مشخصات جریان-نورتابی-ولتاژ دیودهای ساخته شده با ترکیب متفاوت از $\text{MoO}_x:\text{GO}$ ، دیودها تحت ولتاژ ۴ V تا ۱۰ V قرار گرفتند. این مشخصه‌ها در شکل ۳ مشاهده می‌شود. در قسمت (الف) مشخصه جریان-ولتاژ در نمایش نیم‌لگاریتمی نشان داده شده است. در این نمودار مشاهده می‌شود که دیودهای مربوط به نسبت‌های ۱:۰ و ۱:۱ در ولتاژهای بالا، دارای بیشترین مقاومت هستند در حالی که دیودهای مربوط به نسبت ۱:۱ و ۱۰:۱ به علت اینکه در ولتاژ یکسان دارای جریان بیشتری است، دارای کمترین مقاومت هستند. این افزایش را می‌توان به تسهیل تزریق حفره در دیود نسبت داد. اما در ولتاژهای پایین، دیود ساخته شده با نسبت ۱۰:۱ دارای کمترین مقاومت است. قسمت (ب) این شکل مشخصه نورتابی-ولتاژ را نشان می‌دهد. در اینجا نیز به دلیل تزریق بهتر حفره و توازن مناسب‌تر حفره و الکترون در لایه‌ی نورتاب، در دیودهای مربوط به ۱:۱ و ۱۰:۱، بازهم بیشترین نورتابی وجود دارد. قسمت (ج) بازده توان برحسب ولتاژ را نشان می‌دهد. با توجه به مشخصه‌های جریان-ولتاژ-نورتابی، دیودهای ساخته شده با نسبت ۱:۱ و ۱۰:۱ دارای بیشترین نورتابی بودند ولی جریان عبوری در ولتاژهای پایین مربوط به نسبت ۱:۱ کمتر از ۱۰:۱ بود که در نتیجه، بیشترین بازده مربوط به دیود ساخته شده با مشخصه ۱:۱ با بازده 1m/W $7/5$ می‌شود. در یک LED هرچه توازن بارها بهتر باشد بازده نیز بالاتر است. بازده‌ی بیشینه LEDهای ساخته شده برای نسبت‌های $\text{MoO}_x:\text{GO}$ ۱:۰، ۲۰:۱، ۱۰:۱، ۲:۵:۱ و ۱:۱ و ۰:۱، به ترتیب برابر با ۶/۰، ۶/۱، ۶/۵، ۷/۰ و ۷/۵ 1m/W و ۶/۶ بود.

آنالیز میکروسکوپ نیروی اتمی (AFM) از گرافن اکسایدها گرفته شد که در شکل ۲ (الف) نشان داده شده است. در قسمت (ب) ضخامت ناحیه قرمز شده در قسمت الف نشان داده شده است. ضخامت این لایه حدود $1\text{ }\mu\text{m}$ است که نشان از تک‌لایه بودن ساختار گرافن اکساید به کار رفته دارد. ساختار شیمیایی پلیمر نورتاب استفاده شده با نام ابر زرد که در LEDهای این پروژه به کار رفته است در شکل ۲ قسمت (ج) نشان داده شده است [۲۱]. وجود پیوندهای پای^۱ کربن که در این شکل نیز مشخص است، باعث رسانایی در این دسته از پلیمرهای مزدوج می‌شود. همچنین طیف‌های مربوط به جذب و الکترومولینسانس این پلیمر در قسمت (د) این شکل نشان داده شده است. لایه‌های تشکیل دهنده LEDهای ساخته شده، در شکل ۲ قسمت (ه) نشان داده شده است. ضخامت این لایه ۱۸۰، ۲۵، ۷۵، ۰/۵ و ۱۰۰ nm به ترتیب برای $\text{MoO}_x:\text{GO}$ ، ITO، ابر زرد (لایه نورتاب)، LiF و Al بود. حفره‌ها از طریق پایانه مثبت منبع تغذیه به ITO و از آنجا توسط لایه تزریق کننده حفره که در اینجا $\text{MoO}_x:\text{GO}$ است به لایه نورتاب انتقال داده می‌شود. از طرف دیگر نیز الکترون توسط لایه LiF/Al به پلیمر نورتاب تزریق می‌شود. حضور $0/5\text{ nm}$ لایه عایق LiF باعث تزریق بهتر الکترون از Al به سیستم می‌شود [۲۲ و ۲۳]. از بازترکیب الکترون و حفره در این لایه، فوتونی به انرژی برابر با اختلاف تراز انرژی HOMO^2 و LUMO^3 پلیمر مزدوج تولید می‌شود که این فوتون از ITO خارج می‌گردد. در شکل ۲ (و) ترازهای انرژی LED ساخته شده ترسیم شده است. حفره‌ها از تابع کار ITO که برابر به $4/8\text{ eV}$ است به سمت لبه‌ی نوار ظرفیت MoO_x ($5/4\text{ eV}$) منتقل می‌شوند و از آنجا به لبه‌ی نوار ظرفیت گرافن اکساید و سپس روی HOMO ی پلیمر قرار می‌گیرند. الکترون‌ها هم از تابع کار LiF/Al روی LUMO ی پلیمر تزریق می‌شود که در نهایت الکترون‌ها و حفره‌ها در این ماده با یکدیگر بازترکیب می‌شوند. این نکته را نیز باید اضافه کرد که LUMO و HOMO ی برای PEDOT:PSS به ترتیب $2/3\text{ eV}$ و $5/1\text{ eV}$ است. بدین معنی که اکسید مولیبدن نسبت به PEDOT:PSS

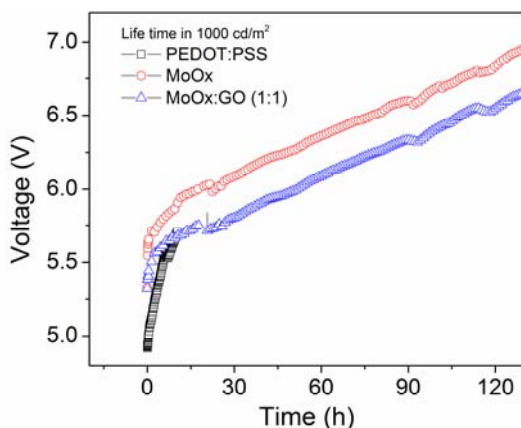
^۱ Pi band^۲ Highest Occupied Molecular Orbital^۳ Lowest Unoccupied Molecular Orbital^۴ Scanning electron microscopy

افزایش بازده و در نتیجه پایداری زمانی بیشتری می شود.

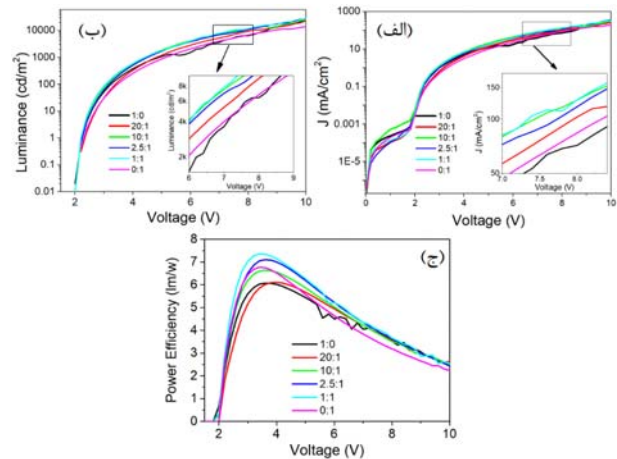


شکل ۴. تغییرات نورتابی دیودها نسبت به نورتابی اولیه بر حسب زمان برای LED استاندارد با PEDOT:PSS، با MoO_x (۱:۰) و (۱:۱).

در شکل ۵ ولتاژ بر حسب نورتابی LEDها نشان داده شده است. در این شکل به خوبی مشاهده می شود که شیب افزایش ولتاژ دو سر LED ساخته شده با PEDOT:PSS نسبت به دو LED دیگر به صورت چشم گیری زیادتر است. در تمام زمان ها (بعد از ۱۰ ساعت) ولتاژ دو سر LED (۱:۱) نسبت به دو دیود دیگر کمتر است که نشان از بازده بالای این دیود در طول زمان را دارد. یکی از دلایل این کاهش در دیود ساخته شده با نسبت ۱:۱ را می توان به علت توازن بهتر حامل های بار در نظر گرفت که این توازن در بهینه بودن بازده گویا است [۱۷].



شکل ۵. ولتاژ بر حسب زمان برای LED استاندارد با PEDOT:PSS، با MoO_x (۱:۰) و (۱:۱).



شکل ۳. منحنی های جریان- ولتاژ (الف)، نورتابی- ولتاژ (ب) و بازده توان- ولتاژ (ج) برای LEDهای ساخته شده برای ترکیب های مختلف $\text{MoO}_x:\text{GO}$ نشان داده است.

با توجه به شکل ۳، LED ۱:۱ برای بهترین نمونه انتخاب شد. علاوه بر آن، دو دیود ۱:۰ (لایه ی فقط شامل MoO_x) و دیود استاندارد با PEDOT:PSS نیز برای آزمون طول عمر مورد بررسی قرار گرفت. نورتابی دیودها روی 1000 cd/m^2 تنظیم شد. دستگاهی که در آن دیودها مورد بررسی طول عمر قرار گرفتند در مد جریان ثابت تنظیم شد. این دستگاه قابلیت اندازه گیری نورتابی دیودها را با گذر زمان دارد. در شکل ۴ نورتابی ها بر اساس زمان نشان داده شده است. نورتابی دیود استاندارد که با PEDOT:PSS ساخته شده بعد از ۱۰ ساعت به نصف مقدار اولیه خود می رسد این در صورتی است که برای دیود ساخته شده با MoO_x (۱:۰) و (۱:۱) بعد از گذر ۱۴۰ ساعت نورتابی به ترتیب ۶۰ و ۶۴ درصد مقدار اولیه خود است. اگر قرار باشد هر سه دیود روی نورتابی های ۷۰ درصد در نظر گرفته شود، دیود استاندارد بعد از ۳/۵ ساعت به این مقدار می رسد در صورتی که برای MoO_x و $\text{MoO}_x:\text{GO}$ به ترتیب برابر با ۷۰ و ۱۰۰ ساعت است. این افزایش طول عمر را می توان به تزریق بهتر حفره و نشت کمتر جریان، عدم نفوذ عنصر ایندیوم از ITO به PEDOT:PSS به واسطه لایه های منسجم معدنی شامل MoO_x و تجزیه شیمیایی PEDOT:PSS نسبت داد [۲۴، ۲۵]. با توجه به شکل ۲ (و) انرژی لایه ی نوار رسانش گرافن اکساید مقداری از LUMO پلیمر نورتاب بالاتر است. این بالا بودن باعث می شود که الکترون های ورودی به لایه ی نورتاب اجازه خروج کمتری را داشته باشند که این خود به خود باعث نشت جریان کمتر،

مراجع

1. K. Fehse, K. Walzer, K. Leo, W. Lövenich, A. Elschner, Highly Conductive Polymer Anodes as Replacements for Inorganic Materials in High-Efficiency Organic Light-Emitting Diodes, *Advanced Materials*, 2007, 19, 441-444.
2. M. Lu, P. de Bruyn, H.T. Nicolai, G.-J.A. Wetzelaer, P.W. Blom, Hole-enhanced electron injection from ZnO in inverted polymer light-emitting diodes, *Organic Electronics*, 2012, 13, 1693-1699.
3. C.W. Tang, S.A. VanSlyke, Organic electroluminescent diodes, *Applied physics letters*, 1987, ۵۱, ۹۱۳-۹۱۵.
4. H.-S. Kim, D.-K. Kim, An Active-Matrix OLED Driver CMOS IC With Compensation of Non-Uniform Routing-Line Resistances in Ultra-Thin Panel Bezel, *IEEE Journal of Solid-State Circuits*, 2018, 53, 484-500.
5. S.B. Shin, S.C. Gong, H.M. Lee, J.G. Jang, M.S. Gong, S.O. Ryu, J.Y. Lee, Y.C. Chang, H.J. Chang, Improving light efficiency of white polymer light emitting diodes by introducing the TPBi exciton protection layer, *Thin Solid Films*, 2009, 517, 4143-4146.
6. K. Norrman, M.V. Madsen, S.A. Gevorgyan, F.C. Krebs, Degradation patterns in water and oxygen of an inverted polymer solar cell, *Journal of the American Chemical Society*, 2010, 132, 16883-16892.
7. J. Huang, P.F. Miller, J.S. Wilson, A.J. de Mello, J.C. de Mello, D.D. Bradley, Investigation of the effects of doping and post-deposition treatments on the conductivity, morphology, and work function of poly(3, 4-ethylenedioxythiophene)/poly(styrene sulfonate) films, *Advanced Functional Materials*, 2005, 15, 290-296.
8. A.M. Nardes, M. Kemerink, M. De Kok, E. Vinken, K. Maturova, R. Janssen, Conductivity, work function, and environmental stability of PEDOT: PSS thin films treated with sorbitol, *Organic electronics*, 2008, 9, 727-734.
9. Kogo, Y. Sanehira, Y. Numata, M. Ikegami, T. Miyasaka, Amorphous Metal Oxide Blocking Layers for Highly Efficient Low-Temperature Brookite TiO₂-Based Perovskite Solar Cells, *ACS applied materials & interfaces*, 2018, 10, 2224-2229.
10. M. Najafi, F. Di Giacomo, D. Zhang, S. Shanmugam, A. Senes, W. Verhees, A. Hadipour, Y. Galagan, T. Aernouts, S. Veenstra, Highly efficient and stable flexible perovskite solar cells with metal oxides nanoparticle charge extraction layers, *Small*, 2018, 14, 1702775.
11. H.J. Bolink, E. Coronado, D. Repetto, M. Sessolo, E.M. Barea, J. Bisquert, G. Garcia-Belmonte, J. Prochazka, L. Kavan, Inverted Solution Processable OLEDs Using a Metal Oxide as an Electron Injection Contact, *Advanced Functional Materials*, 2008, 18, 145-150.
12. I. Bretos, R. Jiménez, J. Ricote, M.L. Calzada, Low-temperature crystallization of solution-derived metal oxide thin films assisted by chemical processes, *Chemical Society Reviews*, 2018, 47, 291-308.
13. C.-T. Tsai, Y.-H. Liu, J.-F. Tang, P.-C. Kao, C.-H. Chiang, S.-Y. Chu, Effects of novel transition metal oxide doped bilayer structure on hole injection and transport characteristics for organic light-emitting diodes, *Synthetic Metals*, 2018, 243, 121-126.
14. C.P. Chen, Y.D. Chen, S.C. Chuang, High-Performance and Highly Durable Inverted Organic Photovoltaics Embedding Solution-Processable Vanadium Oxides as an Interfacial Hole-Transporting Layer, *Advanced Materials*, 2011, 23, 3859-3863.
15. D.B. Kim, J.C. Yu, Y.S. Nam, D.W. Kim, E.D. Jung, S.Y. Lee, S. Lee, J.H. Park, A.-Y. Lee, B.R. Lee,

در شکل ۶ تصویر LED ساخته شده با گرافن اکساید به

صورت خاموش و روشن نمایش داده شده است. به علت پایداری بالای این دسته از دیودها، می توان از آنها به راحتی در شرایط محیطی استفاده کرد. در این شکل، از یک باتری تجاری ۹ V برای روشن شدن دیود استفاده شده است که پایانه منفی به Al و پایانه مثبت به ITO متصل شده است. شدت بالای نورتابی این دیود به خوبی در شکل مشخص می شود. این نورتابی تقریباً ۱۰۰ برابر شدت نورتابی از یک صفحه نمایشگر معمولی است. با توجه به پلیمر به کار رفته (ابر زرد) در LEDهای مذکور، نورخروجی زرد رنگ است که در این شکل نیز مشهود است.



شکل ۶. تصویر LED روشن و خاموش در شرایط محیطی.

۴- نتیجه گیری

با استفاده از ترکیبهای مختلف حجمی اکسید مولیبدن و گرافن اکساید، لایه های ترکیبی MoO_x:GO ساخته شد. با به کارگیری این لایه ها به عنوان تزریق کننده حفره، LEDهای متناظر ساخته و مقایسه شد. نتایج الکترونی نشان داد که بازده مربوط به نمونه ساخته شده با ترکیب ۱:۱ نسبت به ۱:۰ از نظر بازده حدود ۲۵٪ افزایش داشته است (۷/۵ lm/W در مقابل ۶/۰ lm/W). با توجه به این افزایش، این LED در کنار دو LED ساخته شده با لایه تجاری (PEDOT:PSS) و MoO_x تحت آزمایش طول عمر قرار گرفت. طول عمر این LED به صورت چشم گیری از دو LED دیگر بالاتر بود به طوری که بعد از ۱۰۰ ساعت، نورتابی آن به ۷۰٪ مقدار اولیه می رسد، در صورتی که برای دیود ساخته شده با MoO_x و PEDOT:PSS این زمان ها به ترتیب ۷۰ و ۳/۵ ساعت بود. لایه معرفی شده می تواند در آینده جایگزین خوبی در مقابل PEDOT:PSS تجاری باشد.

- Improved performance of perovskite light-emitting diodes using a PEDOT: PSS and MoO₃ composite layer, *Journal of Materials Chemistry C*, 2016, 4, 8161-8165.
14. J.H. Youn, S.J. Baek, H.P. Kim, D.H. Nam, Y. Lee, J.G. Lee, J. Jang, Improving the lifetime of a polymer light-emitting diode by introducing solution processed tungsten-oxide, *Journal of Materials Chemistry C*, 2013, 1, 3250-3254.
15. H. Alehdaghi, M. Marandi, A. Irajizad, N. Taghavinia, J. Jang, H. Zare, Investigating the different conditions on solution processed MoO_x thin film in long lifetime fluorescent polymer light emitting diodes, *Materials Chemistry and Physics*, 2018, 204, 262-268.
16. H.J. Bolink, E. Coronado, J. Orozco, M. Sessolo, Efficient polymer light-emitting diode using air-stable metal oxides as electrodes, *Advanced Materials*, 2009, 21, 79-82.
17. J.M. Yun, J.S. Yeo, J. Kim, H.G. Jeong, D.Y. Kim, Y.J. Noh, S.S. Kim, B.C. Ku, S.I. Na, Solution-processable reduced graphene oxide as a novel alternative to PEDOT: PSS hole transport layers for highly efficient and stable polymer solar cells, *Advanced Materials*, 2011, 23, 4923-4928.
18. B.R. Lee, J.-w. Kim, D. Kang, D.W. Lee, S.-J. Ko, H.J. Lee, C.-L. Lee, J.Y. Kim, H.S. Shin, M.H. Song, Highly efficient polymer light-emitting diodes using graphene oxide as a hole transport layer, *Acs Nano*, 2012, 6, 2984-2991.
19. H.J. Lee, B.R. Lee, J.S. Park, S.O. Kim, J.Y. Kim, M.H. Song, Hybrid organic-inorganic light-emitting electrochemical cells using fluorescent polymer and ionic liquid blend as an active layer, *Applied Physics Letters*, 2011, 98, 123.
20. T.M. Brown, R.H. Friend, I. Millard, D. Lacey, J.H. Burroughes, F. Cacialli, Efficient electron injection in blue-emitting polymer light-emitting diodes with LiF/Ca/Al cathodes, *Applied Physics Letters*, 2001, 79, 174-176.
21. L. Hung, C.W. Tang, M.G. Mason, Enhanced electron injection in organic electroluminescence devices using an Al/LiF electrode, *Applied Physics Letters*, 1997, 70, 152-154.
22. I.S. Oh, G.M. Kim, S.H. Han, S.Y. Oh, PEDOT: PSS-free organic photovoltaic cells using tungsten oxides as buffer layer on anodes, *Electronic Materials Letters*, 2013, 9, 375-379.
23. Kanwat, W. Milne, J. Jang, Vertical phase separation of PSS in organic photovoltaics with a nickel oxide doped PEDOT: PSS interlayer, *Solar Energy Materials and Solar Cells*, 2015, 132, 623-631.