

Filmes finos de óxido de zinco dopado com alumínio (AZO) utilizados em estruturas de OLEDs

Thin films of zinc oxide doped with aluminium (AZO) used in OLED device structures

Emerson Roberto Santos^{1,2}, Eric Tsuneki Yoshiura Ono¹, Satoru Yoshida¹, Mariane Yuka Tsubaki Oide¹, Elvo Calixto Burini Junior³, Roberto Koji Onmori⁴, Wang Shu Hui¹

RESUMO

Dispositivos OLEDs (diodos orgânicos emissores de luz) foram montados com copolímero PFTB (ou poli[9,9-dioctifluoreno-alt-bis-tienileno(benzotiadiazol)]) como camada emissora de luz. Este copolímero foi sintetizado em laboratório por reação de acoplamento de Suzuki e apresentou rendimento de 80% com pico de fluorescência máxima em ± 710 nm. Nas arquiteturas dos dispositivos OLEDs foram utilizadas camadas de AZO comercial: 1 - ITO/PEDOT:PSS/PFTB/Al; 2 - ITO/PEDOT:PSS/AZO/PFTB/Al; e 3 - ITO/PEDOT:PSS/PFTB/AZO/Al, todos os dispositivos não foram encapsulados. A arquitetura 3 apresentou menor tensão de limiar com 4,5 V e espectros de emissão do OLED polarizado em diferentes tensões, mostrando que a camada de AZO sobre o copolímero emissor, além de atuar como camada injetora de elétrons, também protege o dispositivo contra a degradação, aumentando o desempenho.

Palavras-chave: OLED, PFTB, PEDOT:PSS, AZO, Reação de Suzuki.

ABSTRACT

OLEDs (organic light-emitting diode) devices were assembled with PFTB (or poly[9,9-dioctifluorene-alt-bis-tienilene(benzotiadiazole)]) copolymer as light emitting layer. This copolymer was synthesized in the laboratory by Suzuki coupling reaction and it showed yield of 80% with maximum fluorescence peak in ± 710 nm. In the architectures of OLEDs were used commercial AZO layers: 1-ITO/PEDOT:PSS/PFTB/Al; 2 - ITO/PEDOT:PSS/AZO/PFTB/Al; and 3 - ITO/PEDOT:PSS/PFTB/AZO/Al, all devices were not encapsulated. The architecture 3 presented lower threshold voltage with 4.5 V and emission spectra of polarized OLED at different voltages showing that the AZO layer on the emitter copolymer, besides it acts as electrons transport layer, protects also the device from degradation increasing the performance.

Keywords: OLED, PFTB, PEDOT:PSS, AZO, Suzuki Reaction.

¹Universidade de São Paulo, Engenharia Metalúrgica e de Materiais, São Paulo – SP, Brasil

²Faculdade de Tecnologia de São Paulo, Microeletrônica, iCenter, São Paulo – SP, Brasil

³Universidade de São Paulo, Instituto de Energia e Ambiente, São Paulo – SP, Brasil

⁴Universidade de São Paulo, Departamento de Sistemas Eletrônicos, São Paulo – SP, Brasil

***Autor Correspondente:** Emerson Roberto Santos - Escola Politécnica - Engenharia Metalúrgica e de Materiais, Avenida Professor Mello Moraes, 2463, CEP: 05508-030 - São Paulo - SP, Brasil

E-mail: emmowalker@yahoo.com.br

Recebido: 02 Dez 2017 **Aprovado:** 06 Ago 2018

INTRODUÇÃO

Dispositivos diodos orgânicos emissores de luz (*organic light emitting diodes* - OLEDs) monocromáticos têm sido aplicados diretamente em iluminação de ambientes ou para fins decorativos, nos quais se requerem níveis menores de intensidade de luz¹. OLEDs monocromáticos são pesquisados na área acadêmica oferecendo emissão de luz em diferentes cores, tonalidades e também, maior gama de diferentes materiais²⁻⁵. Mas algumas desvantagens são encontradas nos dispositivos OLEDs, oferecendo pouca estabilidade como baixo tempo de vida (devido à degradação dos materiais com água e oxigênio), menor quantidade de brilho (devido ao desbalanceamento de cargas elétricas) e maior tensão de operação (devido à resistência elétrica)⁶⁻⁸. Em contrapartida, essas limitações nos OLEDs podem ser resolvidas ao longo do tempo, melhorando as metodologias de elaboração dos polímeros emissores, procedimentos de produção e montagem dos dispositivos⁹. À medida que esta tecnologia vem sendo bem difundida ao longo dos anos, principalmente pela área acadêmica, há demonstração clara e objetiva de que a aplicação desses dispositivos eletrônicos apresenta maiores vantagens que desvantagens.

Portanto, este trabalho mostra um pouco do desempenho de OLEDs com copolímero emissor de luz sintetizado em laboratório, juntamente com a aplicação de outros materiais, como é o caso do material conhecido como AZO para tentar avançar ainda mais na questão da estabilidade. A aplicação de filmes finos com AZO, utilizados como materiais injetores de elétrons (*electron transport layer* - ETL) na estrutura dos dispositivos tem demonstrado maior emissão de luz e estabilidade nos dispositivos, propiciando, elevação da corrente elétrica e, conseqüentemente, menor tensão de limiar¹⁰. Uma vez que esse material é comercial e pronto para ser utilizado, a formação desse filme fino não necessita de tecnologias sofisticadas, o que torna fácil a utilização da técnica de *spin-coating*, que também é utilizada na formação de outros filmes finos orgânicos que compõem a estrutura do dispositivo¹¹.

EXPERIMENTAL

Preparação da síntese do copolímero PFTB

Na síntese do copolímero PFTB (ou poli[9,9-dioctifluoreno-alt-bis-tienileno(benzotiadiazol)]), material utilizado para emissão de luz, inicialmente foi utilizado um balão de duas bocas acoplado a um condensador Allihn em banho de silicone aquecido em 75°C¹². Nele, adicionou-se 1 mmol do monômero 2,1,3-benzotiadiazol-4,7-bis (ácido borônico pinacol éster) (0,391 g) e 2 mmols do monômero 2,5-dibromotiofeno (0,484 g), juntamente com 15 mL de solventes orgânicos [10 mL de xileno + 5 mL de THF (tetrahidrofurano)]. Também adicionaram-se 10 gotas de Aliquat III (0,39 g), que facilita a migração de um reagente de uma fase para outra (ao localizar-se preferencialmente na interface) onde ocorre a reação, 15 mL de solução salina 30% K₂CO₃ (aquoso) (4,5035 g) e catalisador à base de paládio [P(Ph₃)₄Pd] (0,017 g). Com esse

sistema agitando e aquecendo, iniciou-se a primeira fase da reação de Suzuki, para a formação do produto intermediário, 4,7-bis(2-bromo-5-tienil)-2,1,3-benzotiadiazol, a partir dos dois monômeros iniciais¹³. Esse sistema foi mantido sob agitação durante 72 horas e depois foi adicionado 1 mmol de reagente 9,9-dioctifluoreno-2,7-ácido diborônico (0,478 g) iniciando assim, a segunda fase da reação, que permaneceu sob as mesmas condições de agitação e aquecimento durante mais 72 horas.

Então, deu-se início a formação da última fase (iniciada após teste com secagem de uma alíquota da solução polimérica em tubo de ensaio), na qual foi adicionado 0,5 mmol de ácido benzenoborônico (0,061 g), responsável por terminar a reação e eliminar possíveis grupos halogenados terminais da cadeia polimérica. Sempre que necessário, alguns mililitros de xileno e THF foram adicionados, pois durante o processo não foi possível manter completa vedação do sistema e parte desses compostos voláteis foi perdida ao longo do tempo.

Com o término da reação, realizou-se a purificação do copolímero, no qual todo produto gerado ao fim da reação foi carregado em um funil de decantação juntamente com a adição de água destilada e diclorometano. Após sucessivas lavagens com agitação, toda a fase aquosa foi descartada repetindo este processo durante três vezes. Então, o mesmo processo de lavagem foi realizado com peróxido de hidrogênio, repetindo-se durante cinco vezes. Após essas lavagens, o líquido descartado foi encontrado perfeitamente límpido, garantindo-se a remoção dos subprodutos e dos compostos boronados que não reagiram, bem como, o catalisador.

Por fim, com a solução contendo o copolímero e os solventes orgânicos, realizou-se o processo de purificação por dissolução e precipitação. Para isso, efetuou-se a retirada do solvente orgânico por meio de um evaporador rotativo com auxílio também de estufa a vácuo, até restar somente o copolímero sólido no balão. Na sequência, o copolímero foi dissolvido em clorofórmio e precipitado em metanol, repetindo-se este mesmo procedimento durante três vezes, com posterior secagem em estufa a vácuo até atingir massa constante para ser utilizada na montagem dos dispositivos OLEDs.

Embora a preparação desta síntese não seja o foco direto deste trabalho, é importante ressaltar que o polímero obtido apresentou rendimento de 80% e um pico de fluorescência máxima em ± 710 nm. Estes resultados, embora não discutidos aqui, justificam a aplicação deste material emissor de luz na montagem de dispositivos OLEDs.

Montagem de dispositivos OLEDs

Dispositivos foram montados com filmes de óxido de índio e estanho (ou ITO) com 15 Ω/\square , depositados sobre vidro (da empresa *Diamond Coatings Limited Company*) e cortados em geometria de 2,5 \times 2,5 cm. Então, realizaram-se quatro trilhas nos filmes de ITO, primeiramente cobrindo os filmes com fita mágica (da empresa 3M) e utilizando ácido clorídrico (grau PA,

da empresa Synth), zinco em pó (da empresa Caal) e algodão (cotonete), parte do filme de ITO desprotegido pela fita adesiva foi removida¹⁴. Então, as amostras foram submersas em água corrente, para remoção de resquícios do ácido misturado com zinco em pó. Na sequência, as trilhas dos filmes de ITO foram limpas com o produto comercial conhecido pelo nome de Aqua Brilho Restaurador de Superfícies (da empresa Adespec) e algodão (cotonete) friccionando as superfícies dos filmes até estarem completamente limpas (verificas apenas pelo aspecto visual). Então, depositou-se o polímero comercial conhecido pelo nome de PEDOT:PSS (ou [poli(3,4-etilenodioxitiofeno):poliestirenosul fonado] - disperso em água com 1,3% em massa, condutividade de 1 S/cm, densidade de 1g/mL a 25 °C e referência: 483095-250G, da empresa *Sigma-Aldrich*), como camada transportadora de buracos (ou *hole transport layer* - HTL). Na formação desse filme utilizou-se a técnica de *spin-coating* com 3.000 rpm por 60 segundos e, então, os substratos foram aquecidos em 55 °C por 5 minutos para evaporação do solvente¹⁵. Na sequência, foram montadas três arquiteturas de dispositivos OLEDs distintas: (1) ITO/PEDOT:PSS/PFTB/Al; (2) ITO/PEDOT:PSS/AZO/PFTB/Al; e (3) ITO/PEDOT:PSS/PFTB/AZO/Al.

Na deposição do material AZO (óxido de zinco dopado com nanopartículas de alumínio, referência 793388, com quantidade de 5mL, da empresa *Sigma-Aldrich*) comercial e na deposição do copolímero PFTB, utilizou-se o mesmo procedimento de deposição e secagem dos filmes de PEDOT:PSS. Antes das deposições, o copolímero PFTB foi diluído em solvente orgânico clorofórmio (grau espectrométrico, da empresa *Tedia*) em concentração de 10 mg/mL. Todo o processo de deposição foi realizado no interior de uma câmara *glove box* em temperatura ambiente e umidade relativa do ar abaixo de 20%. Terminado os procedimentos de deposições dos filmes por *spin-coating*, as amostras foram levadas para a formação dos eletrodos catodos. Nesse processo, utilizou-se alumínio evaporado e máscaras mecânicas formando um filme fino metálico sobre cada estrutura, obtendo-se assim, quatro dispositivos gerados de forma simultânea e com geometria da área ativa de 3,0 × 3,0 mm para cada OLED. Durante todas as análises, os dispositivos não foram encapsulados.

Na polarização dos dispositivos utilizaram-se uma fonte de tensão da marca *Keithley*, modelo 2400, e o *software LabTracer*, versão 2,0 estabelecendo-se corrente máxima em 50 mA. As medições de eletroluminescências dos dispositivos OLEDs realizaram-se com equipamento espectrofotômetro fluorímetro, da marca *Varian*, modelo *Cary Eclipse*, ajustado no modo de bioluminescência e com uma fibra óptica posicionada à janela do sensor do equipamento e também na saída de luz de cada dispositivo testado. Para a obtenção das imagens dos filmes formados, utilizou-se um microscópio óptico da marca *Olympus*, modelo BX 60M, com ampliação de 20 vezes.

RESULTADOS E DISCUSSÃO

Os resultados das três medições de corrente em função da tensão (I-V) dos dispositivos OLEDs são apresentados na Fig. 1.

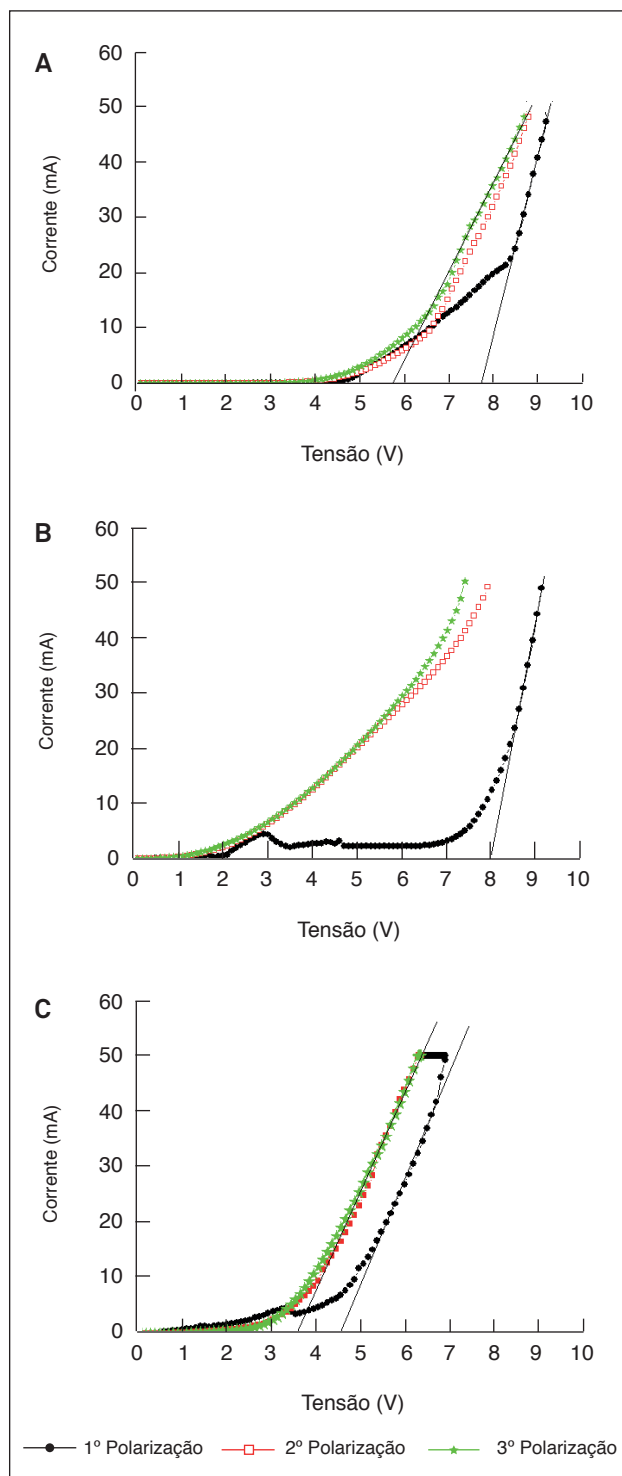


Figura 1: Curvas I-V dos dispositivos OLEDs montados com copolímero emissor PFTB: (A) sem camada de AZO; (B) utilizando-se a camada de AZO como HTL; (C) utilizando-se a camada de AZO como ETL.

Eles revelaram para cada arquitetura, um comportamento diferente nas mesmas.

Nesse caso, o dispositivo OLED com camada de AZO utilizado como ETL (ou seja, depositado sobre a camada de PFTB) apresentou a mais baixa tensão de limiar com 4,5 V (representada

pela linha tangente á curva, até encontrar a tensão no eixo da abscissa)².

Nas outras duas situações, e utilizando esse mesmo método de análise para obter-se a tensão de limiar, os dispositivos apresentaram tensões de limiar com valores acima de 4,5 V, ou seja, de $\approx 5,7$ a 7,5 V para o dispositivo OLED sem camada de AZO, como mostra a Fig. 1a, e $\approx 8,0$ V para o dispositivo OLED com filme de AZO utilizado como HTL (ou seja, depositado sobre a camada de PEDOT:PSS), como mostra a Fig. 1b. Inclusive, nesse dispositivo da Fig. 1b, a segunda e terceira polarizações apresentam indícios de degradação, pois as curvas I-V apresentam maiores variações no eixo da tensão, o que descaracteriza o comportamento elétrico típico encontrado em dispositivos OLEDs^{17,18}.

O fato de que todos os dispositivos apresentem valores diferentes entre as primeiras, segundas e terceiras polarizações, pode estar relacionado com a hipótese de que durante a primeira polarização os portadores de cargas elétricas estabelecem um caminho inicial, locomovendo-se entre diferentes níveis de energia dos diferentes materiais utilizados na arquitetura dos dispositivos, até se encontrarem e formando assim, o par elétron-lacuna. Como nesse caminho percorrido pela primeira vez pelos portadores de cargas existem essas barreiras, eletricamente isso representa resistências à passagem dos portadores e, então, como consequência, existe um aumento na tensão de limiar. Na segunda polarização, como esse caminho já está estabelecido, os portadores conseguem fluir de forma mais livremente e com menores bloqueios refletindo diretamente na redução da tensão de limiar.

Com relação à emissão de luz nos dispositivos, é importante dizer que o OLED sem camada de AZO e o OLED com camada de AZO atuando como HTL não apresentaram luminância alguma, e que somente o dispositivo OLED com camada de AZO atuando como ETL apresentou luminância.

A Fig. 2 mostra os resultados de microscopia óptica obtidos das áreas ativas dos dispositivos nas três situações, após serem polarizados. As regiões ativas dos dispositivos revelaram comportamentos distintos após as polarizações. Nesse caso, a lâmina com camada de AZO atuando como ETL, na Fig. 2c, mostrou-se uma região ativa mais lisa que as demais, pelas imagens de microscopia óptica ampliadas em 20 vezes. Esse problema em dispositivos não encapsulados, também foi relatado por Savvatéev et. al., que não utilizaram AZO como camada ETL ou HTL nos dispositivos OLEDs¹⁹.

A camada de AZO atuando-se como ETL na Fig. 2c demonstra uma determinada proteção para a camada de PFTB e também para a camada de alumínio (utilizado como eletrodo catodo), evitando possíveis degradações (processo de oxidação) com o oxigênio e vapor de água do ambiente. Com isso, a formação de bolhas é evitada, não causando falhas e descontinuidade das camadas poliméricas e também do alumínio, como foram observadas nas regiões ativas das outras configurações de dispositivos diferentes mostradas nas Figs. 2a e 2b. Como os dispositivos não foram

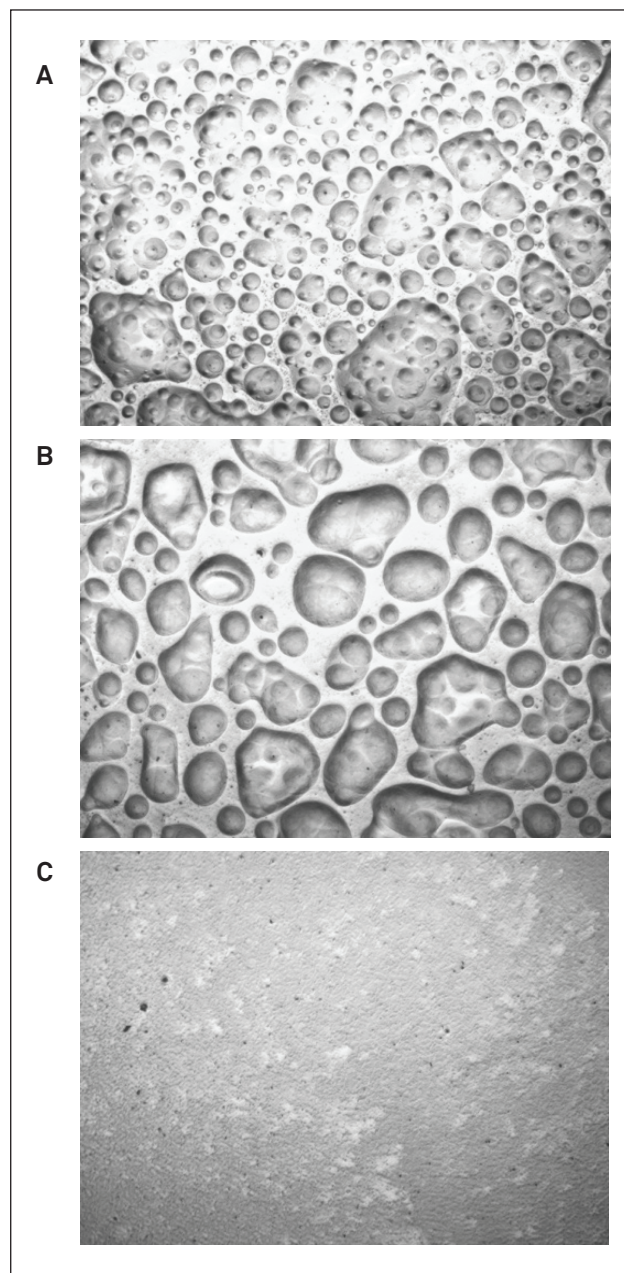


Figura 2: Imagens das regiões ativas dos dispositivos OLEDs após as polarizações e ampliadas em 20 vezes: (a) sem camada de AZO; (b) utilizando-se a camada de AZO como HTL; e (c) utilizando-se a camada de AZO como ETL.

encapsulados, essa proteção ficou mais evidente no aspecto físico observado, melhorando toda a estrutura do OLED, ou seja, todas as interfaces entre os diferentes filmes, PEDOT:PSS, PFTB e alumínio, melhorando também o desempenho dos dispositivos OLEDs, embora, alguns autores utilizem o filme fino de AZO como injetor de lacunas (HTL), ou seja, sobre a camada de PEDOT:PSS apenas^{21,22}.

Nos resultados de eletroluminescência, o dispositivo com camada de AZO, atuando como ETL, revelou melhor desempenho com tensão de 7 V, apresentando-se pico de comprimento de onda dominante em 650 nm (emissão vermelha). Aumentando-se a

tensão de operação para 14 e 22 V, verificou-se uma diminuição no pico dominante, com deslocamentos para os picos em 600 nm (emissão amarela) e em 540 nm (emissão verde), deixando o dispositivo com brilho na luz emitida em tom mais alaranjado, quando visto a olho nu. A hipótese para a ocorrência desse fato deve estar relacionada com algum possível efeito de degradação, causado pelo número de portadores injetados na camada ser mais que suficiente para a emissão máxima de luz; então, dessa forma, a degradação causada pelo feito Joule começa a se pronunciar.

A Fig. 3 mostra resultados de comprimento de onda vs. intensidade para o dispositivo OLED utilizando o AZO como camada ETL em diferentes polarizações e que são similares aos encontrados no trabalho realizado por Ono, que montou a mesma estrutura de dispositivo OLED com ITO/PEDOT:PSS/PFTB/AZO/Al¹². No estudo dele, verificou-se que aumentando a tensão de operação ocorreu um leve deslocamento do pico dominante para ≈ 630 nm, para a mesma tensão de operação em 7 V. Aumentando a tensão para 10 V, o autor deste trabalho também encontrou pouco deslocamento no pico dominante, mas com os surgimentos de novos picos em ≈ 475 nm e ≈ 535 nm.

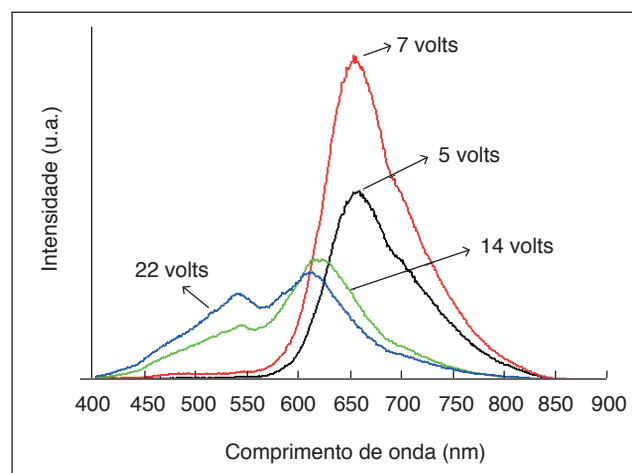


Figura 3: Dispositivo OLED com AZO (atuando como ETL) polarizado com diferentes tensões de 5, 7, 14 e 22 V e com os picos de emissão de luz em diferentes comprimentos de onda.

CONCLUSÃO

Dispositivos OLEDs não encapsulados foram testados com copolímero PFTB sintetizado em laboratório utilizado como camada emissora de luz em diferentes arquiteturas de dispositivos utilizando camada de AZO ora como injetora de lacunas (HTL), ora como injetora de elétrons (ETL).

O dispositivo com AZO atuando como ETL apresentou menor faixa na tensão de limiar com valores de 3,5 a 4,5 V, e também, verificou-se que esta mesma configuração contribuiu para a estabilidade do OLED, não causando bolhas e interrupções na continuidade dos filmes finos envolvidos na estrutura.

Apenas o OLED com camada de AZO atuando como ETL apresentou luminância, como foi relatado o seu desempenho pelas curvas de eletroluminescência. Este dispositivo polarizado com a tensão de 7,0 V verificou-se emissão na cor vermelha (650 nm) e, elevando-se a tensão para 14 e 22 V observou-se uma mudança na cor do brilho emitido, tendendo-se para emissão alaranjada (vista a olho nu), apresentando picos em 600 nm (emissão amarela) e em 540 nm (emissão verde).

AGRADECIMENTOS

Agradecimentos à Coordenação de Aperfeiçoamento de Pessoal de Nível Superior pelo fornecimento da bolsa de pós-doutoramento. À Escola Politécnica, Engenharia Metalúrgica e de Materiais e também à Engenharia Elétrica, ambas da Universidade de São Paulo pela infraestrutura, materiais e equipamentos utilizados.

REFERENCES

1. Demo P. Educação e conhecimento: OLED Technology: challenges and new opportunities. Brabanthallen: Osram; 2013.
2. Correia FOC. Síntese e caracterização de polímeros contendo 9,9 diocetilfluoreno e 8-oxioctilquinolina para utilização como camada emissora de PLEDs. São Paulo. Tese [Doutorado em Engenharia de Materiais] - Escola Politécnica de Engenharia Metalúrgica e de Materiais da USP; 2013.
3. Schuler TE. Síntese e caracterização de copolímeros randômicos poli[bis-(fenilenovinileno)-stat-(1,8-bis-(2,6-dioximetano-1,4-fenileno)-dioxioctano)-1,4-fenileno] e aplicações em diodos emissores de luz orgânicos. São Paulo. Dissertação [Mestrado em Engenharia de Materiais] - Escola Politécnica de Engenharia Metalúrgica e de Materiais da USP; 2008.
4. Silva DJ. Estudo de copolímeros à base de fluoreno e benzotiadiazol em diodos emissores de luz e células solares fotovoltaicas. São Paulo. Dissertação [Mestrado em Engenharia de Materiais] - Escola Politécnica de Engenharia Metalúrgica e de Materiais da USP; 2016.
5. Takimoto HG. Estudo de polifluorenos como camada emissora de dispositivos eletroluminescentes eficientes. São Paulo. Dissertação [Mestrado em Engenharia de Materiais] - Escola Politécnica de Engenharia Metalúrgica e de Materiais da USP; 2013.
6. Karzazi Y. Organic light emitting diodes: devices and applications. Journal of Materials and Environment Science 2014;5(1):1-12.
7. Hewidy D, Gadallah A-S, Fattah A. Hybrid electroluminescent device based on MEH-PPV and ZnO. Physica B: Condensed Matter 2017;507:46-50.
8. Kim HJ, Chin BD. A review of recent advances in backplanes and color patterning technologies for AMOLED display. IEE Photonics Society Newsletters 2013;27(2):4-11.
9. Almeida A. Estudo de encapsulamento em dispositivos OLEDs. Trabalho de conclusão de curso [Tecnologia em Microeletrônica] - Microeletrônica da Faculdade de Tecnologia de São Paulo; 2016.

10. Oide MYT, Takimoto HG, Santos ER, Onmori RK, Hui WS. Effect of doping of a series of semiconductor polymer used in OLEDs. Proceedings of 46th World Chemistry Congress, 40a Reunião Anual da Sociedade Brasileira de Química. IUPAC 49th Assembléia Geral; 2017 Jul 7-14; São Paulo, Brasil.
11. Takimoto HG, Yoshida S, Ono ETY, Nascimento ADM, Santos ER, Onmori RK et al.. Proceedings of 22º CEBECimat - Congresso Brasileiro de Ciência dos Materiais; 2016 Nov 6-10; Natal, Brasil.
12. Ono ETY. Síntese e caracterização de polímero PFTB e a sua aplicação em dispositivos OLED e PSC. Trabalho de conclusão de curso [Engenharia de Materiais] - Escola Politécnica de Engenharia Metalúrgica e de Materiais da USP; 2016.
13. Miyaura N, Suzuki A. Palladium-catalyzed cross-coupling reactions of organoboron compounds. *Chemical Reviews* 1995;95(7):2457-83.
14. Takahashi CM, Montagem de um spinner compacto e de baixo custo para a fabricação de dispositivos P-OLED. Trabalho de conclusão de curso [Tecnologia em Microeletrônica] - Microeletrônica da Faculdade de Tecnologia de São Paulo; 2015.
15. 15. Takahashi CM, Vendrami JA, Junior ECB, Onmori RK, Hui WS, Santos ER. Proceedings of 17º SICT - Simpósio de Iniciação Científica; 2015 Out 5-8; São Paulo, Brasil.
16. Lee WJ, Fang Y-K, Ho J-J, Chen C-Y, Chiou L-H, Wang S-J, Dai F, Hsieh T, Tsai R-Y, Huang D, Ho FC. Organic light-emitting diode on indium zinc oxide film prepared by ion assisted deposition dc sputtering system. *Solid State Electronics* 2002;46(4):477-80.
17. Servin SR, Hernández LAL, Maldonado JL, Carriles R, Ortíz GR, Gutiérrez EP et al. Light emission properties of a cross-conjugated fluorene polymer: demonstration of its use in electro-luminescence and lasing devices. *Polymers* 2016;8(2):43-55.
18. Dong D, Xia J, Yang S, Wu X, Wei, B, Lian L, Feng D, Zheng Y, He G. Hole-transporting small molecules as a mixed host for efficient solution processed green phosphorescent organic light emitting diodes. *Organic Electronics* 2016; 38, 29-34.
19. Savvate'ev VN, Yakimov AV, Davidova D, Pogreb RM, Neumann R, Avny Y. Degradation of nonencapsulated polymer-based light-emitting diodes: noise and morphology. *Applied Physics Letters* 1997;71(23)3344-46.
20. Chin YL, Li WW, Kuan HL. Structure compensation and illumination uniformity improvement through inkjet printing in organic light-emitting diode subpixels. *Journal of Vacuum Science and Technology B* 2017; 35(2):020601-4
21. Wen TW, Ching, MH, Wei ML, Don HT, U JP. Optical effects of NiOx interlayer for OLEDs with AZO embedded anodes. *Materials Chemistry and Physics* 2016;183(1):405-9.
22. Yibin J, Shuming C, Guijun L, He L, Hoi S. A low-cost nano-modified substrate integrating both internal and external light extractors for enhancing light out-coupling in organic light-emitting diodes. *Advanced Optical Materials* 2014;2(5):418-22.