

# Abstract

The ever-increasing demand for energy requires scientific and commercial solutions for the development of sustainable and at the same time high-performance materials. In addition, the development of optimized manufacturing processes and also efforts to achieve a circular economy by implementing recycling aspects in the design of electronic components are increasingly coming into focus. One approach to address these challenges is the use of organic materials, such as triarylamine-based molecules. Triarylamines are thermally stable, possess an electron-rich  $\pi$ -conjugated system, and form stable radical monocations that undergo a reversible redox reaction, which is why they are used for charge transport in organic devices.

This work bridges a gap between two important research fields, namely organic light-emitting diodes and organic batteries. Here, novel triarylamine-based molecules are synthesized and incorporated both as hole transport materials (HTMs) in organic light-emitting diodes and as cathode materials in organic batteries. For this purpose, five triarylamine-based molecules are prepared that are similar in structure to known hole conductor materials, but have a more efficient synthesis design.

After investigating these materials in terms of their electrochemical and optical as well as charge transport and crosslinking properties, they are applied in a basic device structure. By varying the respective hole transport or cathode layer, a stepwise attempt is made to optimize the charge carrier transport and the lifetime of both respective devices. For both devices, the layers were optimized with respect to network density.

OLED devices were fabricated with either single- or double-triphenylamine-based HTMs, which showed - compared with previously known HTMs - promising overall performance, but still potential for improvement.

The cathode for organic-lithium battery devices were investigated regarding their morphology and the structure-property relationships of the respective triarylamine-based copolymers were analyzed. In addition to different variations of the cathode active material composition, the content of conductive additives was also varied to increase the active material content and investigate the influence on charge transport. The optimized battery cathode then leads to an organic-lithium battery with a cycle stability/loss of 7.4% over 10000 cycles.

# Zusammenfassung

Der ständig steigende Energiebedarf erfordert wissenschaftliche und kommerzielle Lösungen für die Entwicklung nachhaltiger und gleichzeitig leistungsstarker Materialien. Darüber hinaus rücken die Entwicklung optimierter Herstellungsprozesse und auch die Bemühungen um eine Kreislaufwirtschaft durch die Implementierung von Recyclingaspekten in das Design elektronischer Komponenten zunehmend in den Fokus. Ein Ansatz zur Bewältigung dieser Herausforderungen ist die Verwendung organischer Materialien, wie zum Beispiel Moleküle basierend auf Triarylamin-Struktur. Triarylamine sind thermisch stabil, besitzen ein elektronenreiches  $\pi$ -konjugiertes System und bilden stabile radikalische Monokationen, die eine reversible Redoxreaktion eingehen, weshalb sie für den Ladungstransport in organischen Bauelementen verwendet werden.

Diese Arbeit überbrückt eine Lücke zwischen zwei wichtigen Forschungsfeldern, nämlich organischen Leuchtdioden und organischen Batterien. Hier werden neuartige Moleküle basierend auf Triarylamin-Struktur hergestellt und sowohl als Lochleiter in organischen Leuchtdioden als auch als Kathodenmaterial in organischen Batterien eingesetzt. Zu diesem Zweck werden fünf Moleküle Triphenylamine hergestellt, die in ihrer Struktur den bekannten Lochleitermaterialien ähneln, aber ein effizienteres Synthesedesign aufweisen.

Nach der Untersuchung dieser Materialien hinsichtlich ihrer elektrochemischen und optischen sowie Ladungstransport- und Vernetzungseigenschaften werden sie in einer grundlegenden Bauelementstruktur eingesetzt. Durch Variation der jeweiligen Lochleiter- bzw. Kathodenschicht wird schrittweise versucht, den Ladungsträgertransport und die Lebensdauer der jeweiligen Bauelemente zu optimieren. Für beide Bauelemente wurden die Schichten im Hinblick auf die Netzwerkdichte optimiert.

OLED-Bauelemente wurden entweder mit einer Einzel- oder einer Doppeltriphenylamin-basierten Lochtransportschicht hergestellt und mit bekannten Lochleitern verglichen, wobei eine insgesamt vielversprechende, aber noch verbesserungsfähige Leistung erreicht wurde.

Die Kathoden in organischen Lithium-Batterie-Bauelementen wurden hinsichtlich ihrer Morphologie untersucht, und die Struktur-Eigenschafts-Beziehungen der jeweiligen Triarylamin-basierten Copolymere in der Schicht wurden analysiert. Neben verschiedenen Variationen der Zusammensetzung des aktiven Kathodenmaterials wurde auch der Gehalt

an leitfähigen Additiven variiert, um den Aktivmaterialgehalt zu erhöhen und den Einfluss auf den Ladungstransport zu untersuchen. Die optimierte Batteriekathode führt dann zu einer organischen Lithiumbatterie mit einer Zyklenstabilität/Verlust von 7,4% über 10000 Zyklen.