

Organische Halbleiterlaser auf Basis Photonischer-Kristalle

Zur Erlangung des akademischen Grades eines

DOKTOR-INGENIEURS

von der Fakultät für

Elektrotechnik und Informationstechnik

der Universität Karlsruhe (TH)

genehmigte

DISSERTATION

von

Diplom-Physiker Marc Stroisch

geb. in: Essen

Tag der mündlichen Prüfung: 14. Juni 2007

Hauptreferent: Prof. Dr. U. Lemmer

Korreferent: Prof. Dr. J. Leuthold

Inhaltsverzeichnis

1	ZUSAMMENFASSUNG	1
2	EINLEITUNG	3
3	GRUNDLAGEN ORGANISCHER HALBLEITERLASER	5
3.1	Organische Halbleiter	5
3.1.1	Optische Eigenschaften organischer Halbleiter.....	7
3.1.2	Transfer-Systeme	10
3.1.3	Elektronische Eigenschaften organischer Halbleiter	11
3.1.4	Strukturkonzepte organischer Halbleiter	11
3.1.5	Stimulierte Emission in organischen Halbleitern	13
3.1.6	Gast-Wirtssystem Alq ₃ :DCM	14
3.1.7	Laser- und Wirtsmaterial Spiro-6-phenyl.....	16
3.2	Planare Wellenleiter	17
3.3	Resonatoren.....	19
3.3.1	Theorie der gekoppelten Wellen	19
3.3.2	Konzept der Photonischen-Kristalle.....	23
3.3.3	Auskopplungsmechanismen in einer Dimension	28
3.3.4	Entstehung von Fernfeldern	30
3.3.5	DBR-Laser	32
3.3.6	Weitere Resonatortypen	32
3.4	Optisches Pumpen	32
3.4.1	Einfluss der Pulslänge	33
3.4.2	Einfluss der Pump polarisation.....	33
3.4.3	Diodengepumpte Festkörperlaser (DPSS-Laser).....	33
3.4.4	Laserdioden	34
3.4.5	LEDs	34
3.4.6	Elektrisches Pumpen	34
4	HERSTELLUNGSPROZESSE	37
4.1	Herstellung von Resonatoren.....	37
4.1.1	Laserinterferenzlithografie	38
4.1.2	Elektronenstrahl-Lithografie	40
4.1.3	Direktes Laserschreiben	40
4.1.4	Selbstorganisierende Verfahren.....	41
4.1.5	Vervielfältigungstechniken	42
4.2	Probenherstellung.....	45
4.2.1	Probenpräparation	45
4.2.2	Aufdampfen.....	45
4.2.3	Aufschleudern	47

5	MESSPLÄTZE ZUR PROBENCHARAKTERISIERUNG.....	49
5.1	Lasercharakterisierung	49
5.1.1	Photolumineszenzmessungen	51
5.1.2	Ortsaufgelöste PL-Messungen.....	51
5.1.3	Laserschwelienmessung	52
5.1.4	Laserkennlinienmessungen.....	52
5.1.5	Winkelaufgelöste Messungen.....	53
5.2	Optische Gittercharakterisierung	56
6	DURCHSTIMMBARE LASER	59
6.1	Konzepte für durchstimmbare organische Laser	59
6.2	Variation der Gitterperiode.....	61
6.3	Durchstimmbare Laser auf Basis von Spiro-6-phenyl.....	63
6.3.1	Herstellungs- und Probenübersicht.....	63
6.3.2	Lasereigenschaften dotierter Spiro-6-phenyl-Laser.....	64
6.3.3	Lebensdauermessungen an Spiro-6-phenyl-Schichten	65
6.4	Homogene Hochindex-Schichten	68
6.4.1	Stand der Technik.....	69
6.4.2	Experimente.....	69
6.4.3	Experimentelle Ergebnisse	70
6.4.4	Wellenleitersimulationen der homogenen Hochindex-Schichten	72
6.4.5	Diskussion der Ergebnisse.....	74
6.4.6	Zusammenfassung und Ausblick.....	76
6.5	Schräg bedampfte Hochindex-Schichten	78
6.5.1	Stand der Technik.....	78
6.5.2	Experimente.....	79
6.5.3	Auswertung und Diskussion.....	80
6.5.4	Zusammenfassung und Ausblick.....	81
7	STRUKTURIERUNG DURCH LASERABLATION.....	83
7.1	Stand der Technik.....	84
7.2	Probenherstellung.....	85
7.3	Homogene Ablation	86
7.4	Interferenzablation	88
7.4.1	Homogenität der Ablation	88
7.4.2	Gittereffizienzen	89
7.4.3	Charakterisierung der Laser.....	90
7.4.4	Zusammenfassung und Ausblick.....	91
8	PHOTONISCHE-KRISTALL-RESONATOREN	93
8.1	Quadratische Gitter	93
8.1.1	Stand der Technik.....	93

8.1.2	Experimente	94
8.1.3	Laserschwellenmessungen an quadratischen Gittern	95
8.1.4	Fernfelder	101
8.2	Hexagonale Gitter.....	114
8.2.1	Stand der Technik.....	115
8.2.2	Probenübersicht.....	116
8.2.3	Rückkoppelungsmechanismen	116
8.2.4	Gitter mit einer Gitterperiode von 220 nm	117
8.3	Zusammenfassung	119
9	AUSBLICK.....	121
10	DANKSAGUNG	125
11	LITERATURVERZEICHNIS	127
12	ABKÜRZUNGSVERZEICHNIS.....	135
13	ANHANG.....	137
13.1	Zeitaufgelöster Messaufbau	137
13.2	Weitere Daten der homogenen Hochindex-Schichten	138
13.3	Laserfächer in eindimensionalen Gittern	140
13.4	Umrechnung der Kikuchi-Linien in Winkelkoordinaten.....	141
13.5	Bandstrukturmessung an quadratischen Gittern	143
13.6	Weitere Fernfelder quadratischer Resonatoren	145
13.7	Gitter mit einer Periode von 440 nm.....	146
13.7.1	Stand der Technik.....	146
13.7.2	Probenübersicht.....	147
13.7.3	Rückkoppelungsmechanismen	147
13.7.4	Fernfelder	150
13.8	Gitter mit einer rechteckigen Symmetrie	152
13.8.1	Rückkopplungsmechanismen.....	152
13.8.2	Laserschwellen und –wellenlängen.....	154
13.8.3	Fernfelder	154
14	LEBENS LAUF	157

1 Zusammenfassung

Diese Arbeit befasst sich mit Festkörperlasern auf Basis organischer Halbleiter. Ihr großer spektraler Durchstimmbereich, ihre vielseitige Prozessierbarkeit und die hohe Lumineszenzausbeute machen sie zu idealen Kandidaten für eine kostengünstige Laserquelle im gesamten sichtbaren Spektralbereich. Im Rahmen dieser Doktorarbeit wurden Photonische-Kristall-Resonatoren zur optischen Rückkopplung eingesetzt und die hergestellten Laser spektroskopisch untersucht.

Mit dotierten Spiro-6-phenyl-Schichten konnte Lasertätigkeit im spektralen Bereich zwischen 420 nm und 650 nm demonstriert werden. Hierbei wurde nur eine einzige Pumpquelle genutzt, was für kompakte integrierte Systeme von besonderem Interesse ist.

Ein neues Konzept zum Durchstimmen organischer Festkörperlaser mithilfe von Hochindexschichten wurde realisiert und demonstrierte einen spektralen Durchstimmbereich von 60 nm. Dieses Konzept bietet sich insbesondere für großflächige Lasersubstrate an und kann sowohl bei der Nutzung von aufgedampften Schichten als auch bei der Prozessierung aus der Flüssigphase genutzt werden. Bei weiteren Untersuchungen mit Hochindexschichten konnte zudem durch die Schrägbedampfung die photonische Bandstruktur gezielt verändert werden.

Das technologische Potenzial der direkten Strukturierung der Oberfläche mithilfe der Laserinterferenzablation wurde anhand des Lasermaterialsystems $\text{Alq}_3\text{:DCM}$ untersucht. Es konnten erfolgreich Laserresonatoren lokal ablatiert werden. Zusätzlich wurde die Ablationsschwelle für das Materialsystem durch die systematische Variation der Ablationsparameter bestimmt. Diese Technik ist neben dem Einsatz für elektrisch gepumpte Laser auch für hybride Systeme mit einer hohen Integrationsdichte interessant.

Durch die Variation der Säulendurchmesser zweidimensionaler Photonischer-Kristall-Resonatoren und durch die Anwendung unterschiedlicher Untersuchungsmethoden konnten die charakteristischen Lasermerkmale und ein optimaler Säulendurchmesser bestimmt werden.

Ein bei Versuchen mit oberflächenemittierenden Lasern auf Basis quadratischer Resonatorkonfiguration beobachtetes Fernfeld wurde systematisch untersucht. Die grundlegenden Mechanismen konnten durch ein Modell der TE-TM-Modenkopplung erklärt werden.

2 Einleitung

Die Nutzung künstlich erzeugten Lichtes findet in allen Bereichen des Alltags und der Wissenschaft statt. Für die Menschheit war die Erfindung der Glühlampe im 19. Jahrhundert ein Aufbruch zu vielen weiteren Formen künstlicher Lichtquellen. Neben den Leuchtstofflampen und den Hochdrucklampen sei hier nur noch die Leuchtdiode erwähnt, welche sich von einem kleinen, roten Leuchtpunkt zu einer Lichtquelle entwickelte, die bereits Einzug in Autoscheinwerfer fand.

Die bedeutendste Strahlungsquelle für die Wissenschaft ist die Erfindung des Lasers im Jahre 1960. Durch seine einzigartigen Eigenschaften ist er ein beliebtes Instrument zur Untersuchung von physikalischen und chemischen Prozessen – hier bringt er im übertragenen Sinne Licht ins Dunkel der Welt. Seine hervorragendsten Kennzeichen können eine spektral enge Emission, eine geringe Strahldivergenz, zeitliche und örtliche Kohärenz, extrem kurze Pulsdauern und hohe Leistungsdichten sein.

Im sichtbaren Spektralbereich bietet sich ein breites Einsatzgebiet für Laser an, ausgehend von der optischen Datenspeicherung über die optische Datenübertragung bis hin zur Analytik. Bei diesen Anwendungen sind niedrige Laserschwellen und die Durchstimmpbarkeit von großer Bedeutung. Dadurch bestehen große Potenziale für organische Festkörperlaser auf Basis Photonischer-Kristalle, welche in dieser Arbeit behandelt werden.

Der erstmalige Einsatz von organischen Materialien in Lasern fand bereits in den 60er Jahren statt. Innerhalb dieses Jahrzehnts konnte mit ihnen Lasertätigkeit im und über den sichtbaren Spektralbereich hinaus gezeigt werden. Zudem wurde eine andere Stärke von organischen Materialien sichtbar: Die Möglichkeit, die Laserwellenlänge über einen großen Spektralbereich durchzustimmen. Der kommerzielle Einsatz von Farbstofflasern beschränkt sich bis heute jedoch auf die Flüssigkeitslaser.

Organische Festkörperlaser sind ein aktuelles Gebiet der Forschung. Neben der Realisierung eines elektrisch gepumpten Lasers stehen bei optisch angeregten Systemen neue Konzepte für die Durchstimmpbarkeit und Strukturierung sowie die Integration in Anwendungen im Vordergrund. Mit Blick auf die Laserdiode sind dabei organische Halbleitermaterialien die bevorzugt eingesetzten Materialien.

In der Nutzung und Verarbeitung von organischen Materialien sind diese den anorganischen überlegen. So können organische Materialien großflächig und kostengünstig prozessiert werden, indem man sie aufschleudert, druckt, fotolithografisch strukturiert oder abformt. Zudem sind der Nutzung jeglicher Substrate, unter anderem auch flexibler Substrate, keine Grenzen gesetzt. Auch können durch die leichte Prozessierbarkeit eine Vielzahl von Laserresonatoren realisiert werden. Eine besondere Klasse stellen dabei Photonische-Kristall-Resonatoren dar.

Das Forschungsgebiet der Photonischen-Kristalle umfasst alle Materialien mit einem periodisch variierenden Brechungsindex. Solche Materialien wurden schon lange eingesetzt, aber erst mit den Veröffentlichungen von Yablonovitch und John im Jahre 1987 wurde ein allgemeineres Verständnis geschaffen und die potenziellen Einsatzmöglichkeiten solcher Kristalle erkannt [1][2]. Seitdem steigt das Interesse an diesem Forschungsgebiet stetig. Im Bereich der Laser sind vor allem zweidimensionale Kristalle von besonderem Interesse. Es gibt zudem zahlreiche Phänomene, welche noch nicht erklärt oder realisiert werden konnten.

Diese Arbeit beschäftigt sich systematisch mit organischen Festkörperlasern auf der Basis Photonischer-Kristalle. Nach einer Einführung in die Grundlagen organischer Laser wird in Kapitel 4 auf die allgemeine Herstellung eingegangen. Die genutzten Messplätze werden in Kapitel 5 vorgestellt. Den Einstieg in die experimentell durchgeführten Arbeiten gibt das Kapitel 6, welches die Durchstimmbarkeit der Laserwellenlängen und den Einsatz von schräg bedampften Hochindex-Schichten zur Beeinflussung der photonischen Bandstruktur behandelt. Die Herstellung von Resonatoren direkt in einem aktiven Wellenleiter durch Laserinterferenzablation wird in Kapitel 7 beschrieben. In Kapitel 8 werden Untersuchungen an verschiedenen zweidimensionalen Gittersymmetrien vorgestellt. Den Abschluss der Arbeit bildet das Kapitel 9 mit einem Ausblick auf den Einsatz von organischen Lasern.

3 Grundlagen organischer Halbleiterlaser

Das Akronym Laser (light amplification by stimulated emission of radiation) umschreibt die Lichtverstärkung von Strahlung durch stimulierte Emission. Laser bauen sich aus einem Licht verstärkenden Material, einem Resonator und einer Pumpquelle auf. In Bild 3.1 sind die Grundelemente und ein Schema des Regelkreises dargestellt. Die Eingangsleistung bzw. die benötigte Energie für das System wird von außen zugefügt. Dies kann elektrisch, optisch oder chemisch geschehen und wird als pumpen bezeichnet. Zur Lichtverstärkung selbst ist ein entsprechendes Material nötig, was auch als Lasermaterial oder aktives Material bezeichnet wird. Als drittes Element ist eine optische Rückkopplung nötig, welche einen Teil des verstärkten Lichtes erneut in das System zurückführt. Diese Rückkopplung wird durch den Laserresonator bewerkstelligt und besteht im einfachsten Fall aus zwei Spiegeln. Um die Laserstrahlung zu nutzen, koppelt ein Spiegel einen Teil der Laserstrahlung als Ausgangleistung aus.

Die beschriebenen drei Komponenten werden in den nächsten Abschnitten, anhand der in dieser Arbeit verwendeten Photonischen-Kristall-Laser auf Basis organischer Halbleiter, erläutert.

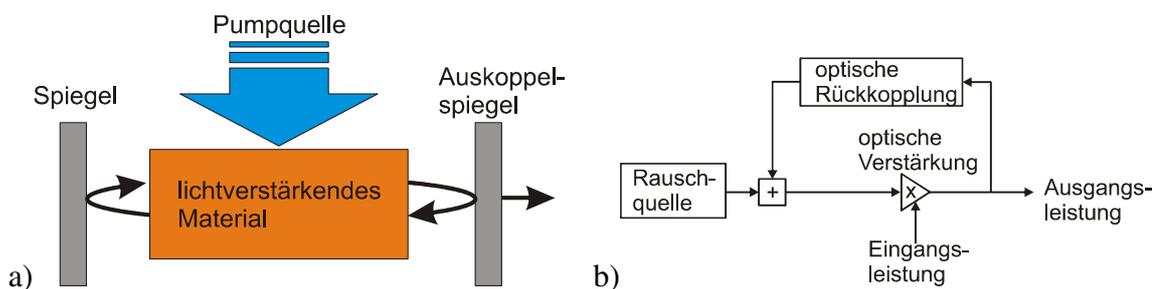


Bild 3.1: a) Grundelemente eines Lasers.
b) Schema der Lichtverstärkung mit den entsprechenden Einflussgrößen.

3.1 Organische Halbleiter

Im Folgenden wird ein Überblick über die Eigenschaften organischer Lasermaterialien gegeben. Dabei werden die physikalischen und chemischen Grundlagen erläutert, welche für eine Beschreibung von optischen, elektrischen und strukturellen Eigenschaften wichtig sind. Für ein in die Tiefe gehendes Verständnis bzw. für grundlegende Begriffe der Chemie sei auf die einschlägige Fachliteratur hingewiesen. So wird die Theorie der Hybridisierung in [3] erläutert und [4] gibt einen ausführlichen Überblick über Farbstofflaser und Laserfarbstoffe. Weitere Literatur wird an den entsprechenden Stellen zitiert.

Die Chemie versteht unter organischen Materialien im Wesentlichen die Klasse der Kohlenwasserstoffe. Ausnahmen sind Carbonate, Kohlensäure und ähnliche

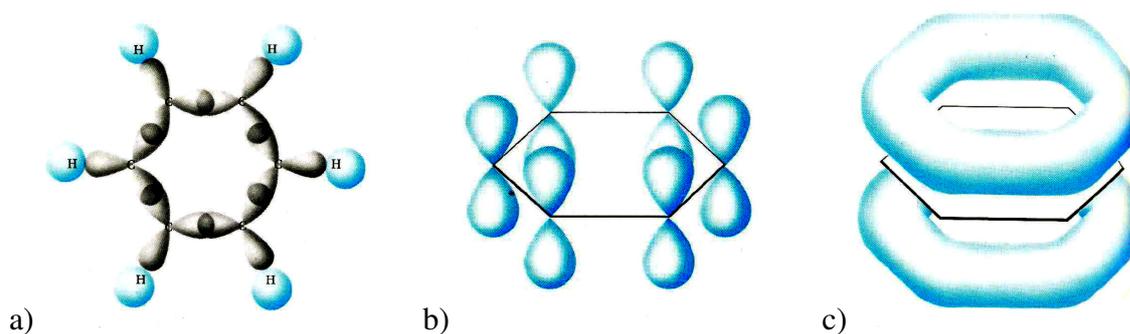


Bild 3.2: a) Die sp^2 -Orbitale der einzelnen Kohlenstoffatome überlappen sich und bilden die in der Molekülebene liegenden σ -Bindungen aus.

b) Jedes Kohlenstoffatom behält ein $2p_z$ -Atomorbital, welches senkrecht zur Molekülebene steht.

c) Die sechs $2p_z$ -Orbitale überlappen und es entstehen sechs π -Orbitale, von denen das bindende Niveau mit der niedrigsten Energie abgebildet ist.

Bildquelle: [3].

Verbindungen. Zusätzlich kann man organische Materialien in gesättigte und ungesättigte Kohlenwasserstoffe aufteilen. Die ungesättigten Kohlenwasserstoffe besitzen mindestens eine Doppel- oder Dreifachbindung. Organische Verbindungen ohne Mehrfachbindungen absorbieren typischerweise erst unterhalb von 160 nm, was energetisch oberhalb der Dissoziationsenergie liegt. Sie würden durch die Anregung zerfallen, weshalb sie für Lasermedien nicht von Bedeutung sind.

Die zentralen optischen Eigenschaften von organischen Farbstoffen beruhen auf Elektronen, welche über dem Molekül delokalisiert sind. Die Delokalisation entsteht durch π -Bindungen, welche sich über zwei Atome hinweg erstrecken.

Das bekannteste Beispiel für ein delokalisiertes Elektronensystem ist der Benzolring C_6H_6 . Er besteht aus sechs Kohlenstoffatomen, welche auf einem Sechseck in einer Ebene angeordnet sind. Alle Kohlenstoffatome besitzen ein sp^2 -Hybridorbital, welches für die σ -Bindungen mit den Nachbaratomen sorgt (s. Bild 3.2 a). Diese Bindungen befinden sich auf den Verbindungsachsen zwischen den einzelnen Atomkernen. Sie sind im Wesentlichen für das starre Grundgerüst des Moleküls verantwortlich. Jedes Kohlenstoffatom behält zudem ein $2p_z$ -Orbital, welches senkrecht zur Ebene des Benzolringes steht (s. Bild 3.2 b). Die sechs $2p_z$ -Orbitale überlappen sich mit ihren Nachbarn, wodurch eine ringförmige Elektronenverteilung ober- und unterhalb der Ebene entsteht, wie in Bild 3.2 c) zu sehen ist. Die Elektronen können sich innerhalb des Orbitals frei bewegen, weshalb man von delokalisierten Elektronen spricht.

In den zur Darstellung von chemischen Strukturen verwendeten Lewis-Formeln werden delokalisierte Elektronensysteme über Doppelbindungen dargestellt, welche von Einzelbindungen getrennt sind. Man spricht in diesem Zusammenhang dann von konjugierten Doppelbindungen bzw. von einem π -konjugierten System.

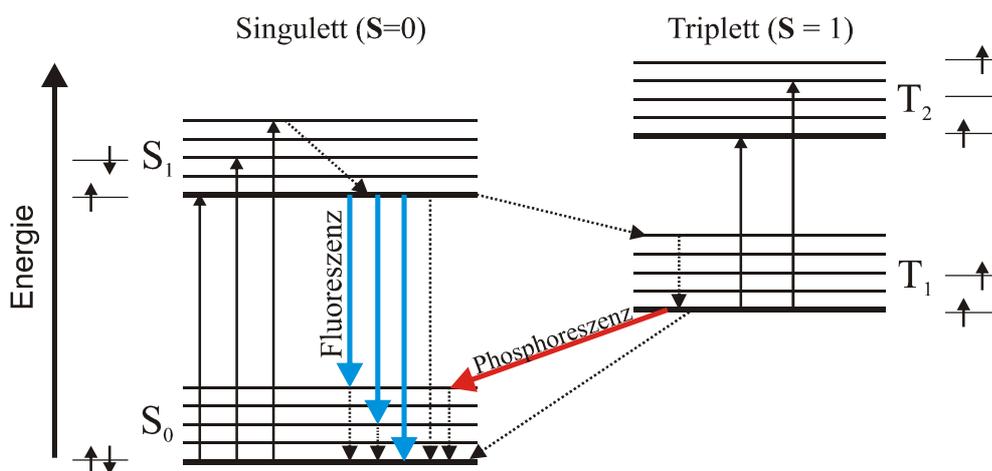


Bild 3.3: Vereinfachtes Termschema der elektronischen Zustände eines organischen Farbstoffes. Es sind jeweils die ersten beiden Singulett- und Triplet-Zustände mit der jeweiligen Spin-Konfiguration abgebildet. Absorption wird durch schwarze Pfeile dargestellt, strahlende Übergänge werden mit durchgezogenen Pfeilen und strahlungslose Prozesse durch gepunktete Linien dargestellt.

3.1.1 Optische Eigenschaften organischer Halbleiter

Betrachtet man das π -konjugierte System vereinfacht als ein freies Elektronengas, welches in einem Potenzialkasten gefangen ist, können die elektronischen Zustände der organischen Moleküle grob abgeschätzt werden. Die Breite des Potenzialkastens ist dabei durch die Länge des π -konjugierten Systems vorgegeben. Die Anzahl der Elektronen wird durch die freien Elektronen bestimmt. Analog zur Atomphysik kann jeder Zustand mit zwei Elektronen besetzt werden. Es bilden sich zudem ein Singulett und ein Triplet-Termschema aus. Beim Singulett ist der Gesamtdrehimpuls $S = 0$. Beim Triplet können die zwei Elektronen des Zustandes auf drei verschiedene Arten zum Gesamtdrehimpuls $S = 1$ kombinieren.

Zusätzlich spalten sich in organischen Materialien, aufgrund der hohen Anzahl von Atomen, die Zustände in zahlreiche vibronische Unterniveaus auf. In Bild 3.3 ist ein vereinfachtes Termschema für einen organischen Farbstoff aufgezeichnet. Die Singulett-Zustände sind mit S_i und die Triplet-Zustände mit T_i gekennzeichnet. Der Index gibt das jeweilige Energieniveau an. So handelt es sich zum Beispiel bei S_0 um den Grundzustand des Singulett-Zustandes, welcher gleichzeitig auch der energetisch niedrigste Zustand ist. Der niedrigste Zustand im Triplet-Schema ist T_1 und nicht T_0 , da ein Gesamtdrehimpuls von $S = 1$ zwei gleich ausgerichteter Spins bedarf und dies aufgrund des Pauliprinzips im Grundzustand nicht möglich ist. Dies geht erst ab dem ersten angeregten Zustand. Die Aufspaltung der Zustände durch vibronische Energieniveaus v ist durch zusätzliche Linien angedeutet. Eine weitere Aufspaltung durch Rotationszustände wurde nicht mitberücksichtigt.

Die Absorption geschieht zunächst aus dem Grundzustand S_0 heraus in höhere Singulett-Zustände bzw. deren Vibrationsniveaus (durchgezogene Linien). Innerhalb

eines Zustandes relaxiert das Molekül strahlungslos auf das energetisch niedrigste Vibrationsniveau (gepunktete Linie). Von dort kann es unter der Emission eines Photons zurück in den Grundzustand fallen (blaue Linie). Dieser Vorgang wird als Fluoreszenz bezeichnet und läuft auf einer Zeitskala zwischen 10^{-6} bis 10^{-12} s ab. Findet dieser Übergang strahlungslos statt, spricht man von interner Konversion (gestrichelte Linie). Die interne Konversion verschlechtert die Effizienz eines Lasers und ist deshalb für gute Laserfarbstoffe zu vermeiden.

Eine andere Möglichkeit ist die Interkombination vom Singulett-Zustand in den Triplett-Zustand. Dieser Prozess sollte aufgrund der Erhaltung des Gesamtdrehimpulses verboten sein. Jedoch findet dieser Prozess aufgrund von internen wie externen Störungen statt. Ist dieser Zustand angeregt, kann er wieder in den Grundzustand emittieren (Phosphoreszenz) oder strahlungslos relaxieren. Es kann allerdings auch zur Triplett-Triplett-Absorption kommen. Diese liegt häufig im Spektralbereich der Fluoreszenz und stellt somit einen unerwünschten Konkurrenzprozess bei der Lasertätigkeit dar. Da zudem der Zustand T_1 sehr langlebig ist (10^{-3} bis 10^2 s), akkumuliert der Zustand auch Elektronen. Dies gestaltet den Betrieb von kontinuierlich emittierenden Farbstofflasern als sehr schwierig. Daher muss das Lasermaterial im Resonator ständig erneuert werden. Dies geschieht durch das Fließen der Farbstofflösung oder dem Bewegen des Substrates [5].

Das Termschema aus Bild 3.3 ist nur eine erste Näherung. Betrachtet man zusätzlich, dass sich im angeregten Zustand die Kernabstände vergrößern, erhält man ein Schema, wie es in Bild 3.4 zu sehen ist. Das Schema wird Potenzialkurvendarstellung genannt.

Die Übergangswahrscheinlichkeit für einen gleichzeitigen Elektronen- und Schwingungsquantensprung kann mit dem *Frank-Condon*-Prinzip beschrieben werden. Eine Grundüberlegung davon ist, dass sich während des (schnellen) Übergangs der Elektronen die Kernabstände aufgrund ihrer wesentlich höheren Masse nicht ändern. Das heißt, die Übergänge in der Darstellung verlaufen immer senkrecht. Die Wahrscheinlichkeit für solche Übergänge ist dann groß, wenn die quantenmechanischen Eigenfunktionen beider beteiligten Zustände Maxima besitzen. Mithilfe dieses Prinzips können die intensivsten Übergänge, also die Maxima in Absorption und Emission, erklärt werden.

Das *Frank-Condon*-Prinzip ist in Bild 3.4 angewandt. Auf der rechten Seite sind dazu die Absorptions- und Emissionsspektren skizziert. Die Spektren liegen spiegelsymmetrisch zueinander, wenn die Abstände der Schwingungsniveaus der beteiligten Zustände identisch sind. Dies kann bei vielen Farbstoffen beobachtet werden. Die Verschiebung zwischen Absorptions- und Emissionsmaximum wird *Stokes*-Verschiebung genannt. Sie sollte für organische Lasermaterialien möglichst groß sein, damit es nicht zur Selbstabsorption kommt.

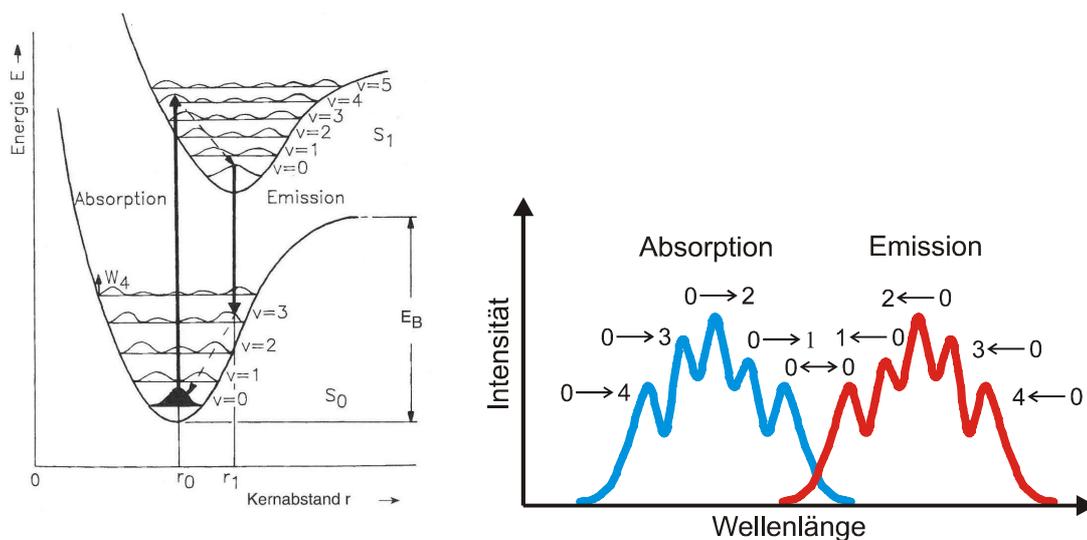


Bild 3.4: Übergänge nach dem Frank-Condon-Prinzip in der Potenzialkurvendarstellung [6]. Rechts sind ein Absorptions- und ein Emissionsspektrum dargestellt. Die mit dem Frank-Condon-Prinzip erkläraren Übergänge zwischen den Schwingungsniveaus sind ebenfalls gekennzeichnet.

Das Absorptionsspektrum stabiler organischer Farbstoffe ist auf den Bereich von circa 220 nm bis 1,0 μm begrenzt. Die Gründe dafür sind ausführlicher in [4] beschrieben und werden hier nur verkürzt wiedergegeben.

Für die untere Abschätzung betrachtet man ein System aus zwei konjugierten Doppelbindungen. Im Bild eines Potenzialkastens bedeutet dies eine geringe Breite des Potentials und somit große elektronische Energieabstände. Das System würde bei einer entsprechenden Abschätzung sein Absorptionsmaximum bei 220 nm besitzen. Durch die oben beschriebene Rotverschiebung des Emissionsmaximums ist davon auszugehen, dass organische Materialien minimal bei circa 250 nm emittieren werden. Für eine einfache Doppelbindung besteht wiederum die Einschränkung, dass das Molekül durch die Absorptionsenergie dissoziiert.

Im langwelligen Spektrum liegt die Grenze für die Absorption bei ungefähr 1,0 μm für einen stabilen organischen Farbstoff. Der Abschätzung liegt die Tatsache zugrunde, dass bei einer Absorptionswellenlänge von 1,0 μm der erste angeregte Singulett-Zustand S_1 energetisch sehr niedrig liegt. Der energetisch noch tiefer liegende metastabile Triplett-Zustand T_1 kann dann mit einer hohen Wahrscheinlichkeit thermisch angeregt werden. Dieser Zustand weist zwei ungepaarte Elektronen auf und ist somit chemisch gesehen biradikal. In diesem hochreaktiven Zustand reagiert der Farbstoff sehr schnell mit seiner Umgebung und zerfällt zu anderen Produkten.

Einige Prozesse, welche die Fluoreszenz auslöchen können, wurden oben bereits beschrieben. Ein weiterer Prozess ist die sogenannte Konzentrationsauslöschung. Sie beschreibt das Phänomen, dass durch Erhöhung der Laserfarbstoffkonzentration, zum Beispiel in einer Lösung, die Fluoreszenz abnimmt. Als Faustregel für das Einsetzen der Abnahme gilt, dass der Abstand der Moleküle unterhalb von 10 nm ist. Dies ist ein

Grund, warum es lange keine organischen Festkörperlaser aus einer reinen Farbstoffschicht gab.

3.1.2 Transfer-Systeme

Besonders interessant für organische Laser sind Systeme, in denen die Absorption der Pumpstrahlung spektral weit entfernt von der Emission der Laser liegt. Dadurch wird eine Selbstabsorption der Emission minimiert, was zu niedrigeren Laserschwelen führt. Eine Möglichkeit, dies zu erreichen, besteht in der Dotierung von aktiven Wirtsmaterialien. Die Dotanten werden auch als Gastmaterial bezeichnet, da ihre Konzentrationen oft nur bei wenigen mol- bzw. Gewichtsprozenten liegen. Die geringen Dotierkonzentrationen erlauben zudem den Einsatz von Farbstoffen, welche in einem reinen Film zur Konzentrations-Auslöschung neigen (s. letzter Abschnitt). Die Aufgaben der Wirtsmaterialien sind die Absorption der Pumpstrahlung und die Weiterleitung der Energie auf das Gastmaterial. Für den Energietransfer von Wirt- zu Gastmaterial sind am häufigsten der Förster- und der Dexter-Transfer verantwortlich.

Bei dem Förster-Transfer handelt es sich um eine strahlungslose Dipol-Dipol-Wechselwirkung. Dabei wird die Energie des angeregten Donators (Wirtsmaterial) auf den Akzeptor (Gastmaterial) übertragen:



Das Sternchen am Donator (D) bzw. am Akzeptor (A) steht für den angeregten Zustand. Dieser Prozess setzt voraus, dass sich das normierte Emissionsspektrum $F_D(\omega)$ des Donators mit dem normierten Absorptionsspektrum $\sigma(\omega)$ des Akzeptors überschneidet. Je größer dieser Überlapp, desto effizienter ist auch der Energieübertrag.

Es sei noch einmal darauf hingewiesen, dass der Prozess strahlungslos abläuft und nicht durch Aussendung eines Photons. Die Effizienz des Übergangs ist wesentlich höher als bei der herkömmlichen Emission und Absorption.

Die Reichweite des Förster-Transfers kann bei bis zu 10 nm liegen. Mikroskopisch kann der Förster-Transfer über die Transferrate K wie folgt beschrieben werden:

$$K = \frac{1}{\tau_D} \frac{1}{R^6} \left(\frac{3}{4\pi} \int \frac{c^4}{\omega^4 n^4} F_D(\omega) \sigma(\omega) d\omega \right) = \frac{1}{\tau_D} \left(\frac{R_0}{R} \right)^6 \quad (3.2)$$

Bei n handelt es sich um den Brechungsindex des Materials, während c für die Lichtgeschwindigkeit im Vakuum steht. Ist der mittlere Abstand R zwischen Donator und Akzeptor genauso groß wie der Försterradius R_0 , dann entspricht K der inversen spontanen Lebensdauer τ_D des angeregten Donators. Der Förster-Transfer ist dann effizient, wenn er wesentlich schneller abläuft als die spontane Emission des Donators.

Die zweite wichtige Form des Energieaustausches in Farbstoffen ist der Dexter-Transfer. Da er in dieser Arbeit keine Rolle spielt, sei er nur vollständigheitshalber

erwähnt. Bei ihm werden Ladungen zwischen Donator und Akzeptor ausgetauscht. Dabei geht das angeregte Elektron vom Donator auf den Akzeptor über. Gleichzeitig wird ein nicht angeregtes Elektron vom Akzeptor auf den Donator transferiert. Da Teilchen ausgetauscht werden, müssen sich Akzeptor und Donator so nahe befinden, dass sich ihre beteiligten Orbitale überlappen können. Deshalb ist dieser Energieübertrag nur bei Molekülabständen von bis zu 1 nm zu beobachten.

3.1.3 Elektronische Eigenschaften organischer Halbleiter

Die elektronischen Eigenschaften organischer Halbleiter basieren auf den delokalisierten Elektronen des π -konjugierten Systems. Die σ -Bindungen spielen dagegen keine Rolle. Im Folgenden wird deshalb nur auf die π -Orbitale eingegangen und der Zusatz π teilweise ausgelassen. Da in dieser Arbeit elektrisch betriebene Bauelemente nicht im Vordergrund standen, ist die Beschreibung stark vereinfacht dargestellt. So wird zum Beispiel nicht mehr zwischen Singulett- und Triplett-Niveaus unterschieden. Die elektrischen Eigenschaften sind vor allem für zukünftige elektrisch gepumpte Laser interessant.

Organische Materialien liegen vorwiegend in amorphen Schichten vor. Deshalb kann das Konzept der Bandstruktur, wie es bei Kristallen existiert, nicht übernommen werden. An die Stelle der Bandlücke tritt bei organischen Halbleitern die Energielücke zwischen dem energetisch am höchsten gefüllten und dem niedrigsten ungefüllten Molekülorbital. Diese Bänder entsprechen bei Kristallen dem Valenz- bzw. dem Leitungsband. Sie werden auch als HOMO (engl. highest occupied molecular orbital) und LUMO (lowest unoccupied molecular orbital) bezeichnet.

Durch das Anlegen einer Spannung können Elektronen von der Kathode auf das LUMO bzw. Löcher von der Anode auf das HOMO gelangen. Unter dem angelegten elektrischen Felde bewegen sie sich dann durch das Material. Dies wird zum Beispiel durch das Hopping-Modell (engl. hüpfen bzw. springen) beschrieben. Hinter diesem Modell steht die bildliche Vorstellung, dass die Elektronen und Löcher von einem Molekül zum anderen eine Barriere überspringen müssen. Diese Art des Transportes geht mit einer Ladungsträgerbeweglichkeit einher, welche bei 10^{-5} bis 10^{-2} cm^2/Vs liegt. Kupfer besitzt im Vergleich dazu eine Beweglichkeit von $100 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ und Halbleiter können noch wesentlich höhere Werte erzielen. Ein ausführlicher Überblick über die elektrischen Eigenschaften π -konjugierter Polymere wird in [7] gegeben.

3.1.4 Strukturkonzepte organischer Halbleiter

Organische Halbleiter sind unter anderem nach ihren Strukturkonzepten klassifizierbar. Einige der ersten eingesetzten Materialien basieren auf Aromaten wie Anthracen, welche als einkristalline Schichten verwendet werden. Die Herstellung ist deswegen sehr aufwendig gegenüber den anderen Materialklassen, welche amorph genutzt werden. Es ist oft sogar hinderlich, wenn sich kristalline Schichten bilden. Die Bildung

von Kristallen oder auch von Aggregaten kann zu der oben beschriebenen Konzentrationsauslöschung führen. Deshalb basieren einige der folgenden Konzepte darauf, dass die Chromophore, also die lumineszierenden Einheiten im organischen Material, über die Molekülstruktur in Abstand gehalten werden.

Für die strukturelle Langzeitstabilität ist es wichtig, dass die amorphen Schichten nicht auskristallisieren. Eine in diesem Zusammenhang wichtige Größe ist die Glasübergangstemperatur T_g . Oberhalb von T_g geht die Schicht aus dem glasartigen Zustand in den flüssigen Zustand über. Dieser Prozess ist mit dem Schmelzen von Kristallen vergleichbar. Der Unterschied hierzu ist, dass bei Kristallen zusätzlich Energie aufgewandt werden muss, um das Kristallgitter zu zerstören. Da sich oberhalb von T_g die Moleküle freier bewegen können, kann es durch Erhitzen und anschließendes Abkühlen hier zu der nicht gewollten Bildung von Aggregaten oder Kristallkörnern kommen. Deshalb spricht eine hohe Glasübergangstemperatur meistens für strukturell stabile Schichten.

Die bekanntesten Strukturkonzepte sind die Klasse der π -konjugierten Polymere und die Klasse der Kleinen-Moleküle die bekanntesten Vertreter. Polymere sind langkettige Moleküle, welche aus sich wiederholenden Grundeinheiten (Monomere) bestehen. Sie werden im Allgemeinen aus der Flüssigphase aufgeschleudert (s. Abschnitt 4.2.3). Dadurch können die Schichten potenziell günstig und großflächig hergestellt werden. Die bekanntesten Vertreter im Bereich organischer Laser sind das Leiterpolymer MeLPPP [8] bzw. Polymere, welche auf Polyfluoren [9] basieren. Einen Überblick über konjugierte Polymere wird in [10] gegeben.

Eine exakte Definition für Kleine-Moleküle existiert nicht. Im üblichen Gebrauch sind Materialien gemeint, welche aufdampfbar sind und nicht zu anderen Klassen gehören. Klein bedeutet, dass beim Verdampfen das Molekül nicht zerstört wird, wie es bei den Polymeren der Fall wäre. Allerdings können zahlreiche Kleine-Moleküle auch in Lösung gebracht und wie Polymere verarbeitet werden. Der bekannteste Vertreter für OLEDs wie auch organische Laser ist Alq₃. Dieses Material wird in Abschnitt 3.1.6 noch genauer behandelt, da es, mit DCM dotiert, in dieser Arbeit als Laserschicht genutzt wurde.

Es existiert außerdem das Konzept der sogenannten Spiro-Verbindungen, dessen Vertreter das Spiro-6-phenyl ebenfalls in dieser Arbeit verwendet wurde und in Abschnitt 3.1.7 diskutiert wird. Im Wesentlichen werden bei diesem Strukturkonzept zwei (kleinere) Moleküle durch ein Kohlenstoffatom strukturell miteinander verbunden.

Als letztes Konzept sei noch die Klasse der Dendrimere erwähnt. Diese organischen Halbleiter bestehen typischerweise aus einem Chromophor im Kern, von dem konjugierte Zweige ausgehen. Der Grad der Verästelung wird in diesem Zusammenhang auch als Generation bezeichnet. Ein Dendrimer erster Generation besitzt somit nur einfache Zweige.

Die Reinheit der vorliegenden Ausgangsmaterialien ist für die Qualität einer Schicht von großer Bedeutung. Deshalb gelten aufdampfbare Moleküle, welche durch Sublimation gereinigt werden können, häufig als die besseren Materialien. Im Bereich der organischen Laser hat sich dies allerdings nicht bemerkbar gemacht.

3.1.5 Stimulierte Emission in organischen Halbleitern

Für eine Verstärkung von Licht in Materie muss eine Besetzungsinversion vorliegen. Diese kann für ein Zweiniveausystem schwerlich erreicht werden. Deshalb sind Drei- bzw. Vierniveausysteme nötig [6]. Bei organischen Halbleitern handelt es sich um natürliche Vierniveausysteme, was anhand des vereinfachten Termschemas in Bild 3.5 zu sehen ist.

Das untere Niveau bildet dabei den Grundzustand ($S_0, \nu = 0$). Durch optische Anregung wird ein Elektron in einen höheren vibronischen Zustand des ersten angeregten Singulett-Zustandes (S_1, ν) gehoben. Nach einer (schnellen) strahlungslosen Relaxation befindet sich das Elektron schließlich im unteren Schwingungsniveau ($S_1, \nu = 0$). Damit sich später eine Besetzungsinversion aufbauen kann, muss dieser Zustand langlebig sein. Kommt es zur Emission, fällt das Elektron in ein vibronisches Niveau des Grundzustands (S_0, ν) zurück. Um eine Reabsorption zu verhindern, sind kurzlebige Zustände von Vorteil. Zudem beschränkt eine lange Lebensdauer die Anzahl der möglichen Pulse in einer Sekunde (Wiederholrate).

Damit die stimulierte Emission gegenüber der spontanen überwiegt, muss der Verstärkungsfaktor im Medium groß genug sein oder das Licht muss mehrfach durch das Medium laufen.

Läuft Licht mit der Wellenlänge λ durch ein verstärkendes Medium, nimmt seine Intensität I exponentiell zu:

$$I = I_0 \exp[(g(\lambda) - \alpha(\lambda))L] \quad (3.3)$$

Dabei handelt es sich bei I_0 um die Anfangsintensität, bei L um die zurückgelegte Strecke im Medium, bei $\alpha(\lambda)$ um den Absorptionskoeffizienten und bei $g(\lambda)$ um den

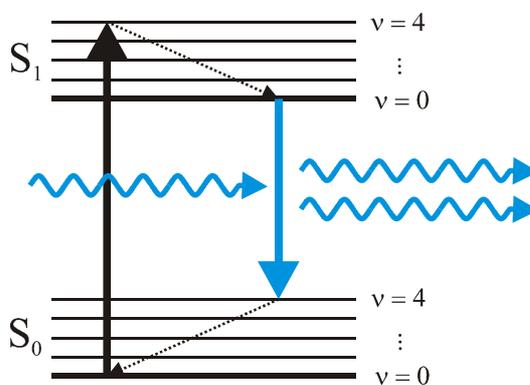


Bild 3.5: Vereinfachtes Termschema eines organischen Laserfarbstoffes.

spektralen Gewinn. Der spektrale Gewinn hängt über dem spektralen Wirkungsquerschnitt der stimulierten Emission σ_{SE} mit der Dichte der angeregten Zustände N_A zusammen: $g(\lambda) = \sigma_{SE} \cdot N_A$. Erhöht man also die Pumpleistung, vergrößert sich der spektrale Gewinn. Da er abhängig von der Wellenlänge ist, findet eine wellenlängen-selektive Verstärkung statt. Dies macht sich im Spektrum dadurch bemerkbar, dass es sich um den maximalen Gewinn herum zuschnürt (s. Bild 3.6 c). Als Schwelle hierfür muss der Exponent in Formel (3.3) größer als Eins sein: $(g(\lambda) - \alpha(\lambda))L \geq 1$. Dieser Prozess wird auch als ASE (engl. amplified spontaneous emission) bezeichnet. Vergegenwärtigt man sich den Begriff Laser (light amplification by stimulated emission of radiation), ist eine Abgrenzung nicht naheliegend. Im allgemeinen Sprachgebrauch wird für einen Laser ein Resonator benötigt, in dem sich (kohärente) Eigenmoden bilden können. Deshalb ist auch häufig der Begriff „spiegelloser Laser“ zu finden, wenn es um ASE geht.

Findet die Verstärkung in einem Wellenleiter statt, muss noch beachtet werden, dass die Mode sich über das aktive Medium hinaus ausdehnt (s. Abschnitt 3.2). Deshalb muss in Formel (3.3) der spektrale Gewinn g mit dem optischen Füllfaktor Γ gewichtet werden. Dies kann durch die Einführung des modalen Gewinns $g_{mod} = g \cdot \Gamma$ geschehen.

3.1.6 Gast-Wirtssystem Alq₃:DCM

Alq₃ ist eines der am häufigsten verwendeten Materialien im Bereich organischer Bauelemente. Neben dem Einsatz als aktiv leuchtende Schicht in organischen Leuchtdioden findet man es auch als Transportschicht bzw. Elektronenleiter wieder. Aufgrund der geringen Quanteneffizienz von 35 % ist es als aktives Lasermaterial hingegen nicht geeignet [11]. Es bietet sich aber als Gastmaterial in einem Förster-Transfer-System (s. Abschnitt 3.1.2) an.

Alq₃ gehört zu der Klasse der Kleinen-Moleküle und wird im Deutschen als Aluminium-tris-(8-hydroxychinonlin) und im Englischen als Tris-(8-hydroxyquinoline)-aluminium bezeichnet. Eine 3D-Darstellung des Moleküls ist in Bild 3.6 a) zu sehen. Aus chemischer Sicht handelt es sich um eine Komplexverbindung mit einem Aluminiumatom im Zentrum. Drei Chinolinringe bilden die Liganden. Da ein Ring jeweils zwei Koordinationsstellen vom Aluminium besetzt, nennt man ihn mehrzählig. Komplexe mit mehrzähligen Liganden, welche sich um das Zentralatom biegen, werden auch Chelate genannt [3]. Deshalb wird Alq₃ auch häufig als Metallchelate bezeichnet. Im Englischen heißen die Ringe *quinoline*-Ringe, woher das ‚q‘ entstammt. Durch seine hohe Glasübergangstemperatur von $T_g = 175^\circ$ erweist sich Alq₃ als strukturell sehr stabile Schicht.

Im Bereich organischer Laser muss das Alq₃ zusätzlich mit einem Laserfarbstoff dotiert werden. Hier kommt vor allem DCM bzw. DCM2 zum Einsatz. Die Strukturformel von DCM ist in Bild 3.6 a) zu sehen. Es handelt sich um einen Farbstoff, welcher häufig in Farbstofflasern genutzt wird, als Film allerdings Konzentrationsauslöschung zeigt. Die

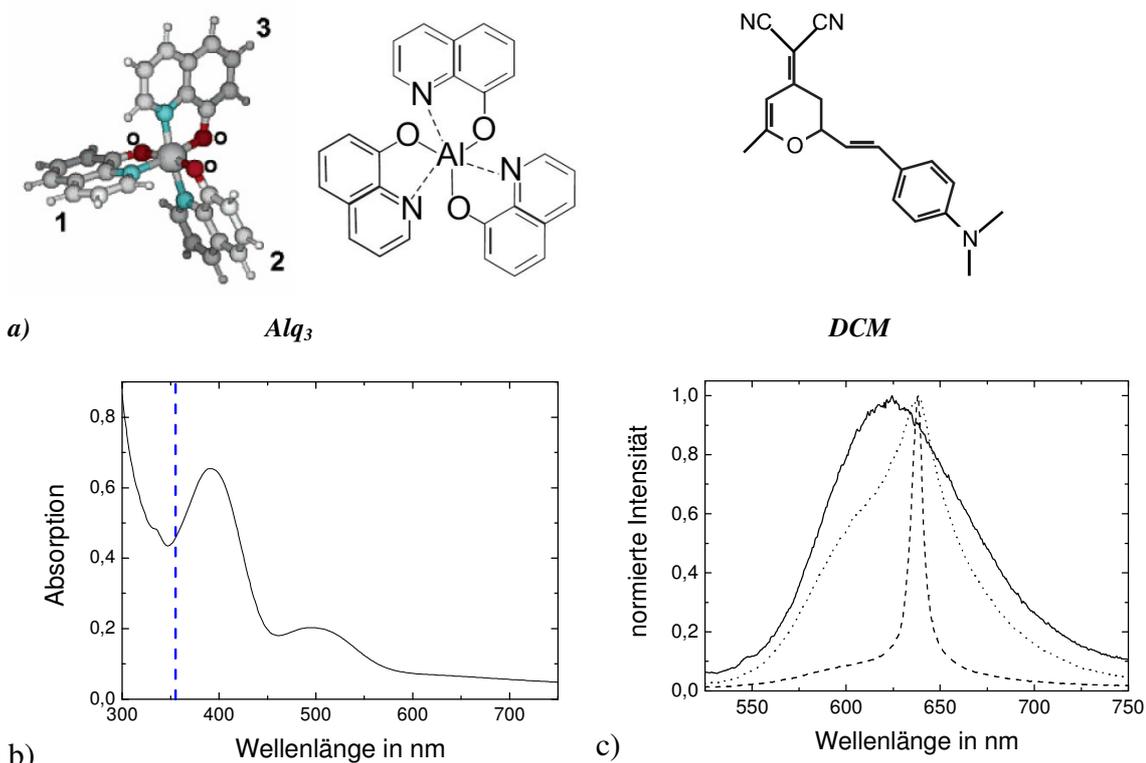


Bild 3.6: a) Strukturformeln von Alq_3 und DCM. Die 3D-Darstellung von Alq_3 entstammt [12].
 b) Absorptionsspektrum von Alq_3 :DCM. Die blaue gestrichelte Linie deutet eine Pumpwellenlänge von 355 nm an.
 c) PL-Spektren von Alq_3 :DCM bei unterschiedlichen Anregungsleistungen. Über der ASE-Schwelle schnürt sich das Spektrum zu (gepunktete und gestrichelte Linie).

chemische Bezeichnung ist 4-dicyanomethylene-2-methyl-6-(p-dimethylaminostyryl)-4H-pyran.

Alq_3 und DCM werden im Bereich der organischen Festkörperlaser thermisch verdampft. Da sich beide Stoffe lösen lassen, sollte es auch möglich sein, sie aufzuschleudern.

Für Laser ist eine Dotierung von 2-3 mol% DCM optimal. Bei geringeren Dotierungen ist der Förster-Transfer nicht effizient, bei höheren steigt die Laserschwelle aufgrund von Selbstabsorption des DCMs [11]. Der Spektralbereich des Gewinns umfasst bei 3 mol% DCM einen Bereich von 585 nm bis 690 nm mit einem Maximum bei 613 nm [13]. Diese Werte können anscheinend durch unterschiedliche Herstellungsbedingungen variieren. So konnte in dieser Arbeit die Lasertätigkeit zwischen 605 nm und 728 nm verändert werden (s. Abschnitt 6.2). Beide Beispiele zeigen den großen spektralen Gewinnbereich von Alq_3 :DCM. Ein weiterer Vorteil dieses Systems ist seine Stabilität. So wird in [11] berichtet, dass bei Leistungsdichten von $500 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ auch nach über 10^6 Anregungspulsen keine Veränderungen bemerkbar waren. Zudem lag die Lagerfähigkeit bei über 6 Monaten, wobei die Hauptdegradation auf die Oxidation zurückgeführt wurde. Bei Ausschluss von Sauerstoff sollten die Schichten also wesentlich länger haltbar sein.

Dadurch, dass Alq₃:DCM ein Förster-Transfer-System ist, können die Absorption und die Emission weit voneinander verschoben werden. In Bild 3.6 b) und c) sind ein Absorptionsspektrum und mehrere Photolumineszenzspektren zu sehen. Bei der Absorption existiert jeweils ein Maximum bei 390 nm und 490 nm. Diese sind dem Alq₃ und dem DCM zuzuordnen. Regt man die Schicht bei 355 nm optisch an, wird die Energie vom Alq₃ über den Förster-Transfer auf das DCM übertragen [11]. Da dieser sehr effektiv verläuft, ist im PL-Spektrum (durchgezogene Linie) nur noch die Emission des DCMs mit einem Maximum bei 624 nm zu erkennen. Die Stokes-Verschiebung beträgt also ungefähr 230 nm. Bei einer weiteren Erhöhung der Anregungsenergie, kommt es zu ASE und das Spektrum schnürt sich zusammen.

Zu den bisher vorgestellten Vorteilen von Alq₃:DCM kommt auch noch die kommerzielle Erhältlichkeit dazu. Deshalb wurde dieses Kompositsystem in dieser Arbeit vorwiegend verwendet.

3.1.7 Laser- und Wirtsmaterial Spiro-6-phenyl

Für langlebige Bauelemente sind besonders organische Moleküle mit einer hohen Glasübergangstemperatur T_g von Interesse (s. Seite 11). Eine hohe T_g weisen sogenannte Spiro-Bifluorene, wie das Spiro-6-phenyl, auf¹. Kern dieses Strukturkonzeptes sind starr über ein Spiro-Kohlenstoffatom orthogonal verknüpfte Chromophore. In diesem Fall handelt es sich um zwei Sexiphenyl Moleküle. Die Lewis-Formel und eine 3D-Darstellung sind in Bild 3.7 a) und b) zu sehen. Durch die Struktur sinkt die Beweglichkeit der Moleküle und die Glastemperatur steigt. Sie liegt für das Spiro-6-phenyl bei $T_g = 212$ °C. Die Schmelztemperatur liegt bei 408 °C [14]. Die erste Temperatur wurde an amorphen und die zweite an kristallinen Proben gemessen. Für aufgedampfte Schichten, welche mit der auf Seite 46 beschriebenen Aufdampfanlage hergestellt wurden, musste das Spiro-6-phenyl auf circa 310 °C erhitzt werden, bis es zu verdampfen begann. Für eine Aufdampftrate von circa 3 Å/s lag die Aufdampf-temperatur bei ungefähr 330 °C.

Ein Vorteil dieser Verbindung besteht darin, dass das Auftreten von Konzentrationslöschung im Gegensatz zur nicht Spiro-verknüpften Stammverbindung (Sexiphenyl) deutlich reduziert wird. Eine Verdünnung ist deshalb nicht notwendig. Die optischen Eigenschaften von Filmen aus Spiro-6-phenyl sind in Bild 3.7 c) und d) zu sehen. Das Absorptionsmaximum liegt bei 343 nm, während das Emissionsmaximum nach 418 nm verschoben ist. Ebenfalls in diesem Diagramm ist ein ASE-Spektrum eingezeichnet, welches ein Maximum bei 419 nm aufweist.

¹ Ausgesprochen wird der Name als „Spirosexiphenyl“. Man findet auch die Schreibweise „Spiro-6-Φ“. Der chemische Name lautet: 2,2',7,7'-Tetrakis(biphenyl-4-yl)-9,9'-spirobifluorene.

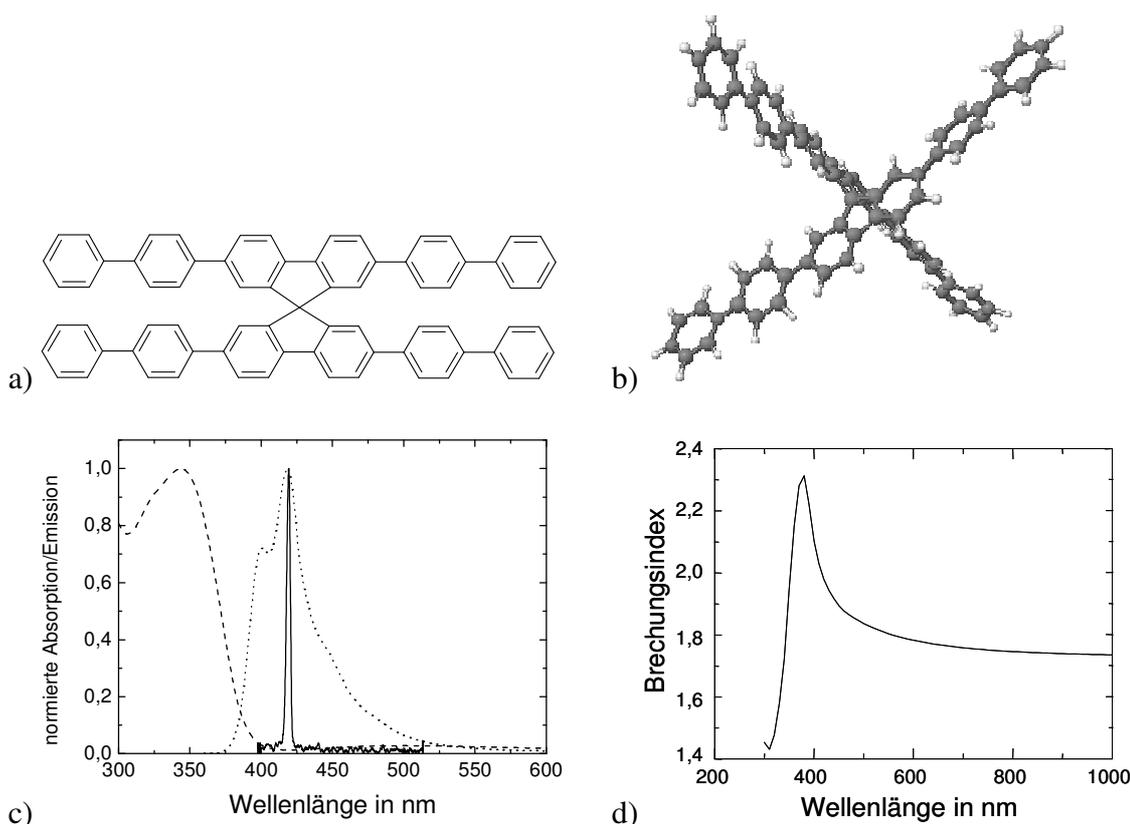


Bild 3.7: a) Lewis-Formel und b) 3D-Ansicht eines Spiro-6-phenyl- Moleküls.
 c) Absorptions- (gestrichelte Linie), Emissions- (gepunktete Linie) und ASE-Spektrum (durchgezogene Linie) einer Spiro-6-phenyls-Schicht.
 d) Brechungsindexverlauf von Spiro-6-phenyl.

Spiro-6-phenyl wurde aufgrund seiner Eigenschaften sowohl als OLED-Material als auch als Lasermaterial verwendet. Mehr über die elektrische Struktur und die optischen Eigenschaften von Spiro-Verbindungen ist in [15] zu finden.

3.2 Planare Wellenleiter

Die hier verwendeten Laser bestehen aus ein- oder zweidimensionalen Resonatoren, das heißt, in mindestens einer Richtung liegt keine Rückkopplung vor. In der dritten Richtung wird das Licht durch Wellenleitung im Resonator gehalten. Betrachtet man einen Laser vereinfacht als drei planare Schichten, so liegt eine Situation wie in Bild 3.8 vor. Die drei Schichten bestehen aus dem Substrat (grau), der aktiven Schicht (orange) und Luft (durchsichtig). Unter bestimmten Voraussetzungen kann sich Licht in der aktiven Schicht ausbreiten und wird innerhalb dieser Schicht geführt. Wenn alle Voraussetzungen erfüllt sind und Licht in der Ebene geleitet wird, spricht man auch von einem planaren Wellenleiter. Bekannter für Wellenleitung sind Glasfasern, welche keinen planaren sondern einen konzentrischen Aufbau besitzen.

Eine Grundvoraussetzung für Wellenleitung ist, dass die innere Schicht den höchsten Brechungsindex aufweist, also $n_2 > n_1, n_3$ gilt. In der geometrischen Optik kann dann

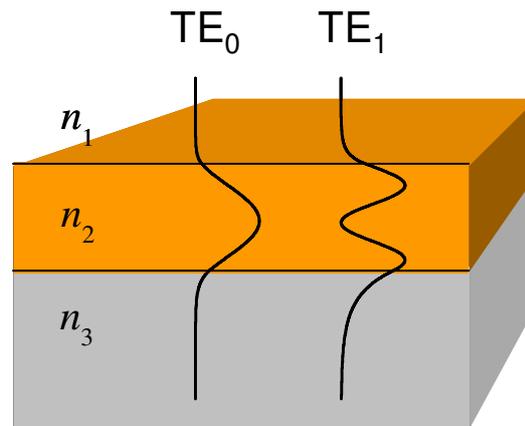


Bild 3.8: Schematischer Aufbau eines Wellenleiters bestehend aus drei Gebieten. In dieser Arbeit sind diese im Allgemeinen Substrat (grau), aktives Lasermaterial (orange) und Luft. Es sind zudem die Modenprofile einer TE_0 und einer TE_1 -Mode eingezeichnet.

Licht, welches sich in der mittleren Schicht ausbreitet, an den Grenzflächen totalreflektiert werden. Es verfolgt so eine Zickzack-Bahn innerhalb der Schicht. Licht, welches oberhalb des Winkels der Totalreflexion propagiert, wird aus dem Wellenleiter ausgekoppelt.

Diese Betrachtung ist nicht mehr richtig, wenn die transversale Ausdehnung des Wellenleiters in der Größenordnung der Wellenlänge des geführten Lichtes liegt. Hier muss zusätzlich noch die Wellennatur des Lichtes in die Überlegung mit einbezogen werden. Dies führt dazu, dass sich gegebene Frequenzen nur durch diskrete Eigenwellen ausbreiten können. Die Eigenwellen sind durch einen eindeutigen transversalen Feldaufbau und eine axiale Wellenzahl bestimmt. Der Feldaufbau kann anschaulich durch die räumliche Verteilung der optischen Energie, dem Intensitätsprofil, dargestellt werden. In Bild 3.8 ist diese Verteilung für die ersten beiden Eigenwellen zu sehen. Da es üblich ist, anstatt Eigenwelle oder -zustand das Wort Mode zu verwenden, wird dies im Folgenden auch geschehen.

Das Feld der geführten Moden ragt auch in die umgebenen Schichten hinein und fällt dort exponentiell ab. Der Anteil der Mode in der aktiven Schicht wird als optischer Füllfaktor Γ bezeichnet. Wie viele Moden zu einer Frequenz in einem Wellenleiter existieren, hängt von den Brechungsindizes der Schichten und deren Schichtdicken ab. Für asymmetrische Wellenleiter ($n_1 \neq n_3$) existiert eine Grenzfrequenz, unterhalb der keine Wellenleitermoden mehr vorhanden sind.

Da die Wellennatur des Lichtes bei der Lösung der Moden eine zentrale Rolle spielt, ist die Polarisation der geführten Welle zusätzlich zu berücksichtigen. Man unterscheidet zwischen TE- und TM-Moden, bei denen das E-Feld in der Ebene bzw. senkrecht dazu liegt.

Eine weitere Größe, die im Zusammenhang mit planaren Wellenleitern auftaucht, ist der effektive Brechungsindex n_{eff} . Dieser spiegelt die Tatsache wieder, dass die Welle über Bereiche mit unterschiedlichen Brechungsindizes verläuft. Die Wellenlänge λ_g der geführten Mode steht mit der Vakuumwellenlänge λ im Verhältnis $\lambda_g \cdot n_{\text{eff}} = \lambda$.

3.3 Resonatoren

Für organische Festkörperlaser wurden viele verschiedene Resonatorformen erfolgreich verwendet [10]. Ein besonders vielversprechender Resonatortyp ist der DFB- bzw. PC-Resonator. Dabei steht DFB für *distributed feedback* (engl.: verteilte Rückstreuung) und PC für *photonic crystal* (engl.: Photonischer-Kristall). Die Unterscheidung zwischen beiden Bezeichnungen ist im Detail zu suchen bzw. historisch bedingt und kann nicht wirklich durchgeführt werden. Beide definieren Materialien mit einem sich periodisch ändernden (komplexen) Brechungsindex. Heutzutage wird die Abkürzung DFB im Allgemeinen für eindimensionale periodische Strukturen genutzt. Für zwei- oder dreidimensionale findet der Begriff Photonischer-Kristalle hingegen seine Anwendung.

Für die organischen Festkörperlaser sind insbesondere Schichtwellenleiter interessant, deren Brechungsindexmodulation durch periodische Störungen des Substrates und/oder der aktiven Schicht erzeugt wird. Mathematisch kann diese Situation von zwei Seiten her untersucht werden. Entweder entwickelt man nach den Eigenmoden des ungestörten Wellenleiters oder man entwickelt nach den Blochwellen des periodischen Wellenleiters.

Im Folgenden wird die erste Variante anhand der Theorie der gekoppelten Wellen in einer Dimension erläutert. Diese Theorie bietet auch die Möglichkeit, DBR-Laser, Reflexionsfilter und Beugungsgitter zu beschreiben. Anschließend wird auf die Theorie der Photonischen-Kristalle und die daraus resultierenden Ansätze für (organische) Laser näher eingegangen. In Abschnitt 3.3.3 wird die Auskopplung für eindimensionale Laser vorgestellt. Mit der Entstehung von Fernfeldern befasst sich Abschnitt 3.3.4. Die weiteren Abschnitte geben einen kurzen Überblick über DBR-Resonatoren und alternative Konzepte.

3.3.1 Theorie der gekoppelten Wellen

Diese Theorie wurde für den eindimensionalen Fall bereits im Jahre 1970 publiziert. Neben den DFB-Lasern bietet sie sich auch für die Beschreibung optischer Gitter an. Die Erweiterung auf zwei- oder dreidimensionale periodische Strukturen erweist sich hingegen als schwierig. Im Folgenden werden die wesentlichen Ideen der Theorie skizziert und die Ergebnisse zusammengefasst. Für eine ausführliche Herleitung und Beschreibung sei auf [16], [17] und [18] verwiesen.

Grundgedanke der Theorie ist die Annahme, dass eine in der Schicht geführte Welle aufgrund der periodischen Variation des Brechungsindex eine Bragg-Streuung erfährt.

Unter bestimmten Bedingungen kann eine weitere Welle dabei die gestreute Energie aufnehmen. Wenn dieser Vorgang auch in die entgegengesetzte Richtung abläuft, führt dies zu einer Kopplung beider Wellen. Sofern die Schicht zusätzlich noch einen optischen Gewinn aufweist, kann es bei bestimmten Frequenzen zu Oszillationen kommen. Die Verstärkung schaukelt sich bis zur Lasertätigkeit auf. Die Schwelle dafür steigt allerdings, je weiter sich die Frequenz von der Bragg-Frequenz entfernt. Dies führt im Gegensatz zum Fabry-Perot-Resonator zu einer Modenselektion.

Betrachtet man zunächst einen Wellenleiter ohne Gewinn und mit einer Variation des Brechungsindex zwischen $z = 0$ und L , wie es in Bild 3.9 a) dargestellt ist. Ferner seien die beiden ebenen Wellen:

$$\begin{aligned} a(z,t) &= A \exp(-i\beta_1 z) \exp(i\omega t) \\ b(z,t) &= B \exp(-i\beta_2 z) \exp(i\omega t) \end{aligned} \quad (3.4)$$

Eigenmoden des ungestörten Wellenleiters. A und B sind komplexe Vorfaktoren und $\beta_{1/2}$ und ω stellen die Ausbreitungskonstanten bzw. die Kreisfrequenz der Moden dar. Wenn sich diese Wellen im Bereich der Modulation mit der Periode Λ befinden, kann es laut Theorie zu einem Energietransfer kommen. Die notwendige Bedingung dafür ist die sogenannte longitudinale Phasenanpassung:

$$\beta_1 - \beta_2 = m \frac{2\pi}{\Lambda}. \quad (3.5)$$

Bei m handelt es sich um eine natürliche Zahl, welche im Sprachgebrauch als m -te Ordnung bezeichnet wird. Für das Zustandekommen einer Kopplung muss allerdings auch der sogenannte transversale Überlapp der beiden Wellen vorhanden sein. Dieser hängt im Wesentlichen von der Gitterform und den transversalen Modenprofilen ab.

Für den Fall zweier gegenläufiger Wellen ($\beta_1 = -\beta_2 \equiv \beta$) erhält man mithilfe der Beziehung $\beta = 2\pi/\lambda_g$ die Gleichung:

$$\begin{aligned} 2\beta &= m \frac{2\pi}{\Lambda} \\ \Rightarrow \Lambda &= m \frac{\lambda_g}{2} = m \frac{\lambda}{2n_{\text{eff}}}. \end{aligned} \quad (3.6)$$

Dabei beschreibt λ_g die Wellenlänge der geführten Mode und λ die Wellenlänge im Vakuum. Die Gleichung (3.6) ist auch als Bragg-Gleichung bekannt. Der durch die Gitterperiode Λ festgelegte Wellenvektor wird auch als Bragg-Vektor β_0 bezeichnet. In der Literatur häufiger zu finden sind die umgerechneten Größen Bragg-Frequenz und Bragg-Wellenlänge.

Wenn Gleichung (3.5) erfüllt ist, werden die komplexen Amplituden aus Gleichung (3.4) abhängig voneinander und man erhält:

$$\begin{aligned} dA/dz &= \kappa_{ab} B \exp(-i2(\Delta\beta)z) \\ dB/dz &= \kappa_{ba} A \exp(i2(\Delta\beta)z). \end{aligned} \tag{3.7}$$

Die Kopplungskonstanten κ_{ab} und κ_{ba} sind ein Maß für die Stärke des Energieübertrags zwischen den Wellen. Sie hängen von der Form der Modulation ab und es gilt $\kappa_{ab} = \kappa_{ba}^*$. Der Betrag der Konstanten wird mit κ abgekürzt. $\Delta\beta = \beta - \beta_0$ beschreibt die Abweichung zwischen dem Wellenvektor β und β_0 .

Betrachtet man den Fall aus Bild 3.9 a), dass eine Welle von links mit der Amplitude $B(0)$ in das korrigierte Gebiet läuft und dass die von rechts kommende Welle vorher die Amplitude $A(L) = 0$ besitzt, können die Bestimmungsgleichungen (3.7) gelöst werden. Im Korrugationsgebiet zeigt sich dabei für die Amplitude $B(z)$ eine exponentielle Abhängigkeit mit der Propagationskonstanten β' :

$$\beta' = \frac{m \cdot \pi}{\Lambda} \pm i\sqrt{\kappa^2 - (\beta - \beta_0)^2} \tag{3.8}$$

Für $\Delta\beta < \kappa$ wird die Konstante imaginär, was einen vollständigen Übertrag der Energie in die links laufende Welle bedeutet. Die Welle wird also vollständig reflektiert. Der Bereich der Frequenzen, für den dies zutrifft, wird als verbotener Frequenzbereich, Bandlücke oder auch als Stopband bezeichnet. Die Bandlücken treten für jedes ganzzahlige $m > 0$ auf. Für die Breite der Bandlücke gilt:

$$(\Delta\omega) = \frac{2 \cdot \kappa \cdot c}{n_{eff}} \tag{3.9}$$

Dabei handelt es sich bei c um die Vakuumlichtgeschwindigkeit.

Wird nun der spektrale Gewinn g eingeführt, tauschen die Wellen weiterhin Energie

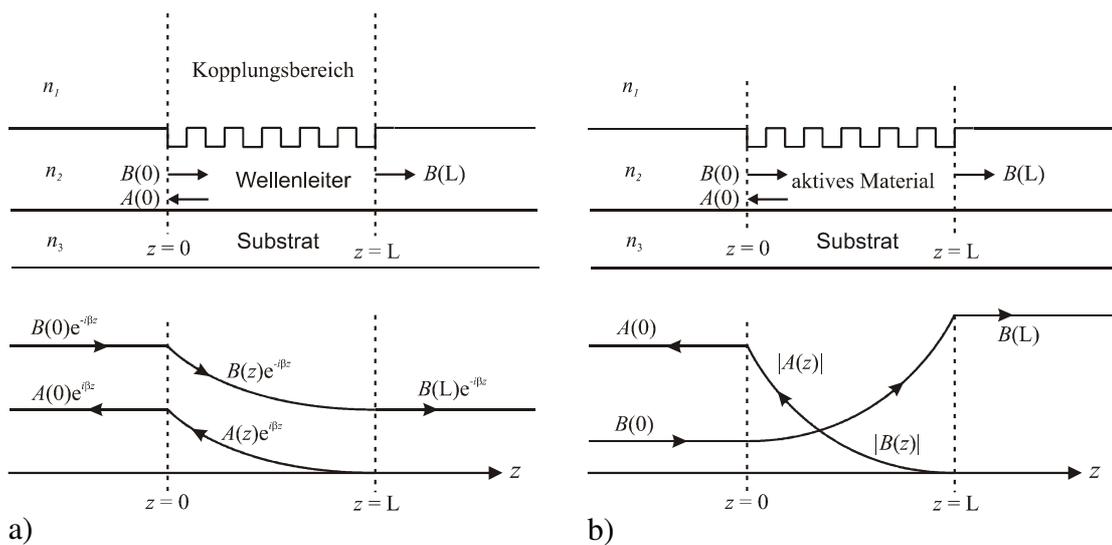


Bild 3.9: Schema der Modenkopplung durch eine periodische Störung eines Wellenleiters ohne (a) und mit (b) verstärkendem Medium.

aus, allerdings steigen gleichzeitig bei beiden die Amplituden. Dies ist in Bild 3.9 b) dargestellt. Unter bestimmten Voraussetzungen kann es zu einer Oszillation kommen. Die Wellen schaukeln sich gegenseitig hoch und es kommt zur Lasertätigkeit. Die Bedingung für Lasertätigkeit ist stark von den Nebenbedingungen abhängig und kann nur für Sonderfälle analytisch gelöst werden.

Für den Fall $g \gg \kappa$ erhält man zum Beispiel ähnlich wie beim Fabry-Perot-Laser eine abzählbar unendliche Menge an Lösungen, dessen Frequenzen ω_n immer den gleichen Abstand besitzen. Der Index ‚n‘ steht dabei für die longitudinalen Moden. Sie liegen symmetrisch um die Braggfrequenz ω_0 herum, ohne diese anzunehmen. Je weiter sich eine Mode von der Braggfrequenz entfernt, desto höher wird allerdings die Gewinnschwelle g_s :

$$\omega_n = \omega_0 - \left(n + \frac{1}{2}\right) \frac{\pi \cdot c}{n_{\text{eff}} \cdot L} \quad (3.10)$$

$$\frac{\exp(2g_s)n^L}{g_s^2 + (\Delta\beta)_n^2} = \frac{4}{\kappa^2}$$

Dies führt zu einer Modenselektion und im günstigsten Fall zu einem monomodigen Betrieb. Diese Betriebsart wird insbesondere bei vielen Anwendungen in der Telekommunikation und in der Analytik gefordert.

Für den Fall $g \ll \kappa$ erhält man für die Gewinnschwelle:

$$g_s \cdot L = \left(\frac{\pi}{\kappa \cdot L}\right)^2 \quad (3.11)$$

Bis jetzt wurde davon ausgegangen, dass es sich um eine reine Indexmodulation handelt. Dies ist insbesondere für aktive Schichten richtig, welche so dick sind, dass man die Modulation des Gewinns durch das Gitter vernachlässigen kann. Durch das periodische Pumpen eines Wellenleiters, zum Beispiel mit einem linearen Interferenzmuster, entsteht dagegen eine reine Indexmodulation. In diesem Fall sind alle Frequenzen, insbesondere die Braggfrequenz, erlaubt. Dadurch schwingt der Laser auf nur einer Frequenz an, im Gegensatz zu zwei Frequenzen bei der Indexkopplung. Eine Bandlücke in der Frequenz kann dann nicht mehr beobachtet werden.

Oft liegt aber eine Mischung aus beiden vor. Diese ist für Laser mit Ordnungen $m \geq 2$ unumgänglich, da hier periodische Verluste durch Auskopplung auftreten. Dabei ist eine Lasertätigkeit beobachtbar, welche nicht an den Bandkanten stattfindet, sondern etwas in die Bandlücke verschoben ist.

Die Doppelmode bei reiner Indexmodulation muss nicht zwangsläufig auftreten. So kann durch diverse Einflüsse eine Mode früher anschwingen als die andere. Dies kann durch die Einführung eines sogenannten Phasensprungs im Gitter erreicht werden.

Die Rück- und Auskopplungskoeffizienten können nicht pauschal angegeben werden, da sie stark von der Gitterform abhängen. Für Rechteckgitter mit der Steglänge w ergibt sich zum Beispiel für den Kopplungskoeffizienten m -ter Ordnung κ_m :

$$\kappa_m \sim \frac{1}{m} \left| \sin \left(\pi \cdot m \frac{w}{\Lambda} \right) \right| \quad (3.12)$$

Interessant ist an dieser Formel vor allem, das Abfallen des Koeffizienten für höhere Ordnungen. Das bedeutet mit Blick auf Formel (3.11), dass auch die Laserschwelle steigt. Zudem wird das Licht schlechter in der Struktur gefangen, was sich je nach Resonatorgröße dadurch bemerkbar macht, dass es am Rande als Verlust verloren geht.

3.3.2 Konzept der Photonischen-Kristalle

Als Beginn des Forschungsgebietes der Photonischen-Kristalle werden in der gängigen Literatur die Veröffentlichungen von E. Yablonovitch und S. John zitiert [1], [2]. Insbesondere die Möglichkeit, mit zwei- und dreidimensionalen periodischen Strukturen Licht gezielt zu manipulieren, wurde von ihnen theoretisch gezeigt und herausgestellt. Experimentell wurden periodische Strukturen schon vor 1987 hergestellt. Im Wesentlichen wurden diese in eindimensionalen Dünnschichtsystemen für Antireflex-Schichten oder Dünnschichtfiltern eingesetzt. Aber auch die DFB-Laser sind Photonische-Kristalle.

Da es sich um periodische Störungen handelt, können dieselben Konzepte wie in der Kristallphysik angewendet werden. Dazu gehören insbesondere das Bloch-Theorem und die Bandstrukturen. Die Gleichungen auf denen die Kristallphysik und die Physik der Photonischen-Kristalle aufbauen, sind jedoch unterschiedlicher mathematischer Natur. So beinhaltet in der Quantenmechanik die skalare Eigenfunktion $\psi(\mathbf{r}, t)$ und bei Photonischen-Kristallen der magnetische Vektor $\mathbf{H}(\mathbf{r}, t)$ die Information des Systems. Eine vergleichende Darstellung beider Systeme gibt Tabelle 3.1. Sie zeigt die Gemeinsamkeiten, aber auch die Unterschiede. Für eine ausführliche Darstellung des Themas Photonische-Kristalle sei auf die Referenzen [19] und [20] verwiesen.

Tabelle 3.1: Vergleich der Festkörperkristalle/Quantenmechanik mit Photonischen-Kristallen. Die Tabelle orientiert sich an [19], wo weitere Punkte aufgezählt sind.

	Quantenmechanik	Photonische-Kristalle
Hauptfunktion, welche die Information des Systems beinhaltet.	skalare Wellenfunktion $\psi(\mathbf{r}, t)$	magnetischer Feldvektor $\mathbf{H}(\mathbf{r}, t)$
Wonach kann man die Funktionen entwickeln?	Nach den Energie-Eigenfunktionen $\Psi_E(\mathbf{r})$: $\Psi(\mathbf{r}, t) = \sum_E c_E \Psi_E(\mathbf{r}) e^{iEt/\hbar}$	Nach den harmonischen Moden $\mathbf{H}_\omega(\mathbf{r})$: $\mathbf{H}(\mathbf{r}, t) = \sum_\omega c_\omega \mathbf{H}_\omega(\mathbf{r}) e^{i\omega t}$

Bestimmungsgleichung des Systems	$\left(\frac{p^2}{2m} + V(\mathbf{r})\right)\Psi_E(\mathbf{r}) = E\Psi_E(\mathbf{r})$	$\nabla \times \frac{1}{\epsilon(\mathbf{r})} \nabla \times \mathbf{H}_\omega(\mathbf{r}) = \frac{\omega^2}{c^2} \mathbf{H}_\omega(\mathbf{r})$
	(Schrödinger-Gleichung)	(Helmholtz-Gleichung)
Was ist periodisch?	Potenzial $V(\mathbf{r})$	Dielektrizitätskonstante $\epsilon(\mathbf{r})$
Was ist der physikalische Ursprung?	Elektronen streuen kohärent an den unterschiedlichen Potenzialen.	Elektromagnetische Wellen streuen kohärent an den Schnittstellen zwischen den unterschiedlichen dielektrischen Regionen.
Was bewirkt die Translationssymmetrie?	Die Energie-Eigenfunktion kann als Blochwelle geschrieben werden: $\Psi_k(\mathbf{r}) = u_k(\mathbf{r})e^{ik \cdot \mathbf{r}}$	Die Harmonischen des Feldes können als Blochwellen geschrieben werden: $H_\omega(\mathbf{r}) = u_\omega(\mathbf{r})e^{ik \cdot \mathbf{r}}$
Gibt es eine Wechselwirkung zwischen den Moden?	Ja. Die Elektronen-Elektronen-Wechselwirkung	Nicht bei linearen Medien. Licht kann superpositionieren.
Natürliche Skala	Durch den Durchmesser der Atome vorgegeben.	Skalierbar für alle Wellenlängen.
Welche Werte sind für den Wellenvektor \mathbf{k} erlaubt?	Sie liegen in den Brillouin-Zonen des reziproken Raumes.	Sie liegen in den Brillouin-Zonen des reziproken Raumes.
Was beschreibt die Bandstruktur?	Die Funktion $E(\mathbf{k})$.	Die Dispersionsrelation $\omega(\mathbf{k})$.
Wodurch zeichnet sich die Bandlücke aus?	Es existieren keine propagierenden Elektronen mit einer Energie innerhalb der Bandlücke, unabhängig vom Wellenvektor.	Es existieren keine Moden innerhalb der Frequenzlücke, unabhängig vom Wellenvektor.
Wie bezeichnet man die Bänder ober- und unterhalb der Bandlücke?	Leitungsband und Valenzband.	Luftband und dielektrisches Band.

Bei der mathematischen Herangehensweise werden als Bestimmungsgleichungen die Maxwell'schen Gleichungen genutzt. Daraus ergibt sich bei entsprechender Umformung und Kombination eine Eigenwertgleichung für das magnetische Feld, die Helmholtz-Gleichung. Prinzipiell kann die Gleichung auch nach dem elektrischen Feld aufgelöst werden. Allerdings ist die Behandlung dieser Eigenwertgleichung in vielen Fällen komplizierter. Über die Relation:

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}) = \left(\frac{-ic}{\omega\epsilon(\mathbf{r})}\right) \nabla \times \mathbf{H}(\mathbf{r}) \quad (3.13)$$

ist es aber möglich das elektrische Feld zu berechnen. Die genaue Lösung kann mit diversen Methoden numerisch bestimmt werden. Neben der Feldverteilung der Moden kann so auch die photonische Bandstruktur berechnet werden. Sie stellt die Dispersionsrelation $\omega(\mathbf{k})$, also die erlaubten optischen Zustände, grafisch dar. In Bild 3.10 a) ist eine Bandstruktur für ein 2D-Gitter mit Säulen zu sehen. Wie aus der Kristallphysik bekannt,

werden für die Bandstruktur nur Wellenvektoren \mathbf{k} innerhalb der ersten Brillouinzone aufgetragen. Zustände, welche außerhalb liegen, können durch einen Gittervektor auf diese Zone zurückgeführt werden und spiegeln sich in höheren Bändern wieder. Das zugehörige reziproke Gitter mit den entsprechenden Hochsymmetriepunkten, der ersten Brillouinzone und der irreduziblen Brillouinzone, ist in Bild 3.10 b) zu sehen.

Frequenzbereiche, in denen keine optischen Zustände existieren, werden als Bandlücke bezeichnet. Gilt dies für alle Richtungen und Polarisationen, spricht man auch von einer vollständigen Bandlücke. Die Breite der Bandlücke hängt, neben der Gitterstruktur, wesentlich vom Brechungsindexkontrast zwischen den Gitterpunkten und der Umgebung ab. Die Bandlücke wird durch die periodische Störung erzeugt. Je größer der Kontrast, desto stärker ist diese Störung und desto breiter wird die Bandlücke. Im Grenzfall eines homogenen Mediums, besitzen beide Materialien den gleichen Brechungsindex und die Bandlücke verschwindet wieder.

Bei organischen Lasern ist die Änderung des Kontrastes nur eingeschränkt möglich, da die aktiven Materialien Brechungsindizes um 1,7 aufweisen. Da das Substrat einen niedrigeren Index aufweisen muss, damit die Lasermode im aktiven Material läuft, existiert kein großer Variationsraum. Neue Konzepte wie die Schrägbedampfung mit Hochindex-Schichten, welche in Abschnitt 6.5 vorgestellt wird, können hier zum Zuge kommen.

Neben der Bandstruktur ist auch die elektrische Feldverteilung der Moden in der Struktur von Interesse. Sie beeinflusst zum Beispiel das Fernfeld eines Lasers (s. Abschnitt 3.3.4).

Für das kurzwelligere Band einer Bandlücke findet man in der Literatur den Begriff Luftband (im Engl.: air band) und für das langwelligere Band den Begriff dielektrisches Band (im Engl. dielectric band). Die Begriffe beruhen auf Strukturen, in denen der photonische Kristall aus einem dielektrischen Material und Luft besteht. Die Zuordnung

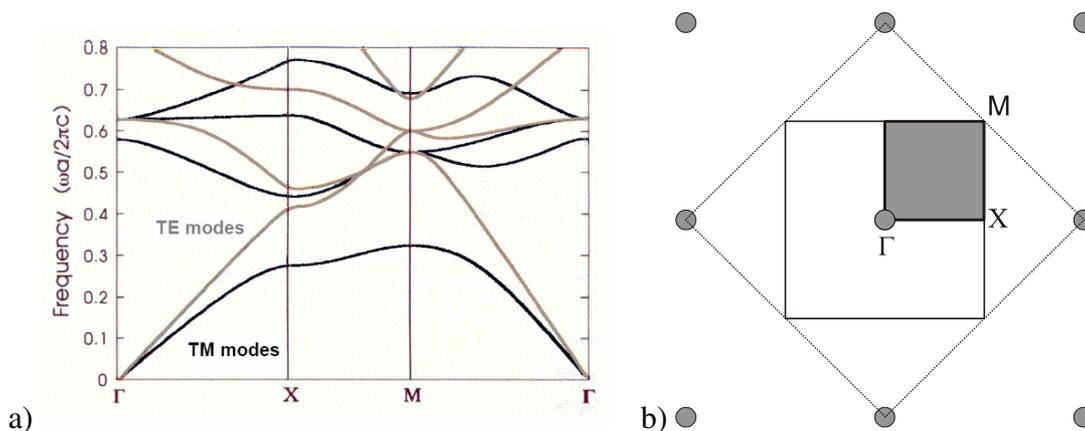


Bild 3.10: a) Bandstruktur eines zweidimensionalen quadratischen Gitters, bestehend aus unendlichen Säulen in Luft [19]. Die Dispersionsrelation der TE-Mode ist grau und die der TM-Mode schwarz gezeichnet. Frequency = Frequenz
b) Irreduzible Brillouinzone eines quadratischen Gitters mit den Hochsymmetriepunkten Γ , X und M.

der Bänder geht auf die Intensitätsverteilungen bzw. die elektrischen Feldverteilungen der zugehörigen Moden zurück. So konzentriert sich dementsprechend die Feldverteilung im Luftband in der Luft und umgekehrt. Da Luft einen niedrigeren Brechungsindex aufweist, besitzt die zugehörige Mode ebenfalls einen niedrigeren Brechungsindex und demzufolge eine kürzere Wellenlänge im Kristall, wodurch sich die Lage der Bänder erklären lässt. Am stärksten ist das Verhalten für langwellige Bänder ausgeprägt und lässt ins kurzwellige Spektrum nach.

Für die organischen Bandkantenlaser (s. unten) bedeutet dies, dass die Lasertätigkeit bevorzugt am langwelligen Band anschwingen sollte, da hier die elektrische Feldverteilung im aktiven Material konzentriert ist.

Die optischen Eigenschaften Photonischer-Kristalle weichen teilweise dramatisch von den Eigenschaften homogener Materialien ab. Die aus ihnen bestehenden Bauelemente basieren unter anderem auf folgenden Besonderheiten:

- Existenz einer photonischen Bandlücke
- Anomalie der Gruppengeschwindigkeit
- Existenz von Defektmoden und lokalen Moden
- Existenz von besonderen Bändern
- Außergewöhnliche Polarisationsabhängigkeiten

Für Laser sind insbesondere die Anomalie der Gruppengeschwindigkeit und die Defektmoden interessant. Die beiden daraus resultierenden Lasertypen werden als Bandkantenlaser und Defektlaser bezeichnet.

Bandkantenlaser

Generell besitzen flache Bänder die Eigenschaft, dass die Gruppengeschwindigkeit v_G der Mode sehr klein ist. Dies findet sich in der Formel

$$v_G = \frac{\partial \omega(k)}{\partial k} \quad (3.14)$$

wieder. Die Gruppengeschwindigkeit steht zu der Zustandsdichte $\rho(\omega)$ der optischen Zustände im reziproken Verhältnis. Eine geringe Gruppengeschwindigkeit zieht also direkt eine hohe Zustandsdichte nach sich. Dies wird auch als „Anomalie der Gruppengeschwindigkeit“ bezeichnet. Die Bedeutung der hohen Zustandsdichte ergibt sich aus der Betrachtung der Emission eines Atoms. Das Lichtquant habe die Energie $E = \hbar \cdot \omega$. Nach Fermis goldener Regel folgt für die Übergangswahrscheinlichkeit $W(\omega)$, dass das Elektron vom angeregten Zustand $|e\rangle$ in den Endzustand $|f\rangle$ springt:

$$W(\omega)d\omega = \frac{2\pi}{\hbar} |\langle f | H_{\text{int}} | e \rangle|^2 \rho(\omega)d\omega \quad (3.15)$$

Dabei steht der Hamiltonoperator $H_{\text{int}} = \mathbf{p} \cdot \mathbf{E}$ für die Kopplung des elektrischen Feldes \mathbf{E} mit dem Dipolmoment \mathbf{p} des Atoms.

Eine hohe Zustandsdichte spiegelt also eine hohe Interaktion zwischen Materie und Licht wider. Eine verschwindende Zustandsdichte bedeutet dagegen, dass die Emission unterdrückt wird. Für Laser sind demnach Zustände in der Bandstruktur interessant, welche verschwindende Gruppengeschwindigkeiten besitzen. Dies ist an Umkehrpunkten und bei flachen Bändern der Fall. Umkehrpunkte in der Bandstruktur sind vor allem an Hochsymmetriepunkten und den Kanten derer Bandlücken zu finden. Dadurch kommt auch der Name Bandkantenlaser zustande.

Es sei an dieser Stelle darauf hingewiesen, dass die Betrachtung vereinfacht ist. Das Maximum der Zustandsdichte ist genau genommen nur für (ideale) flache Bänder genau an der Bandkante, wodurch die Laserwellenlänge im Allgemeinen etwas von der Bandkante entfernt liegt [20].

Defektlaser

Defektlaser nutzen die photonische Bandlücke aus, in denen es zunächst keine erlaubten optischen Zustände gibt. Durch das Einfügen von Defekten in das periodische Gitter bilden sich sogenannte Defektmoden aus. Sie werden durch die Entfernung, Änderung oder Verschiebung eines oder mehrerer Gitterpunkte erzeugt. Die Zustände sind am Defekt lokalisiert und können deshalb auch innerhalb der Bandlücke liegen. Bei einem Defektlaser werden diese Zustände für die Laseremission genutzt.

Durch den Purcell-Effekt kann es zu einer selektiven Erhöhung der spontanen Emission in die Defekt-/Lasermode kommen. Theoretisch kann die gesamte Emission in eine Mode geleitet werden, wodurch eine lineare Kennlinie ohne den typischen Knick entsteht, welcher normalerweise als Laserschwelle bezeichnet wird. Daher findet man auch häufig die Bezeichnung „schwollenloser Laser“. Neben der Reduktion der Laserschwelle ist es bei elektrisch gepumpten Lasern möglich, elektrische Signale ohne weiteres Rauschen in optische Signale zu verstärken. Zudem bieten sich Defektlaser als Einzelphotonenquelle an. Ein Übersichtskapitel über diesen Themenkomplex befindet sich in [20].

Für organische Materialien ergeben sich zwei Probleme bei der Herstellung von Defektlasern. Das erste Problem ist der breite spektrale Gewinn der meisten Materialien. Dadurch liegen meistens auch Zustände außerhalb der Bandlücke im Gewinnbereich, was dazu führen kann, dass die oben beschriebenen Bandkantenlaser ebenfalls anschwingen. Das zweite Problem ist der geringe Brechungsindexkontrast zwischen Substrat und aktivem Material. In der Folge ist die Bandlücke im Allgemeinen nur um die 2 nm breit.

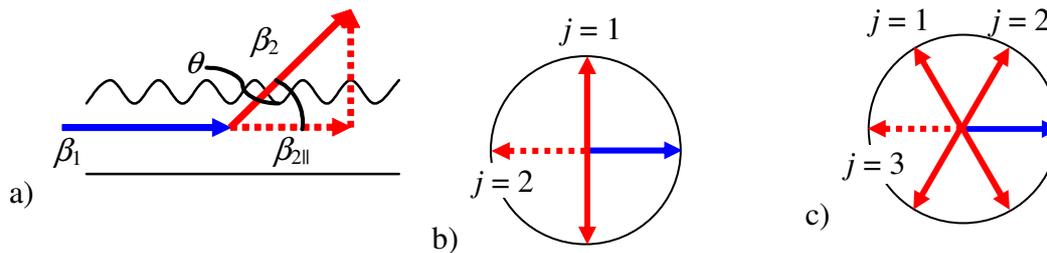


Bild 3.11: Auskopplungsmechanismen in einer Dimension. a) schematische Darstellung einer möglichen Auskopplung. b) Auskopplung im Falle eines 2. Ordnung-Lasers bzw. c) eines 3. Ordnung-Lasers. Die Auskopplung geschieht dabei aus Symmetriegründen nach oben und unten aus der Substratebene, solange es sich um ein transparentes Substrat handelt. Die im Wellenleiter geführte Mode ist in Blau und die ausgekoppelte Mode in Rot dargestellt. Der schwarze Kreis stellt die Ewald-Kugel dar und repräsentiert damit die Energieerhaltung.

3.3.3 Auskopplungsmechanismen in einer Dimension

Im letzten Abschnitt wurde speziell auf den Rückkopplungsmechanismus eingegangen, welcher eine Lasertätigkeit erst ermöglicht. Für die spätere Anwendung sind allerdings auch die Nutzung des Laserlichtes und somit die Auskopplung von besonderem Interesse.

Die Auskopplung wird für eindimensionale DFB-Laser mithilfe der oben schon eingeführten Gleichung:

$$\beta_1 - \beta_2 = m \frac{2\pi}{\Lambda} \quad (3.16)$$

erläutert.

Die Auskopplung in zweidimensionalen Strukturen wird in Abschnitt 8.1.4 behandelt. Hier wird das aus der Kristall- und Oberflächenphysik bekannte Konzept des Impulsraumes mit den Hilfsmitteln der Bragg-Ebenen und der Ewald-Konstruktion angewandt.

Für die Beschreibung eines DFB-Lasers gilt es den Rückkopplungsprozess zu identifizieren. Dieser ist durch die Wahl der Gitterperiode Λ mithilfe der Bragg-Formel (3.6) festgelegt. Diese Gleichung wurde aus der Formel (3.17) hergeleitet, mit der Annahme, dass die gestreute Welle genau entgegengesetzt zur einfallenden Welle läuft. Wie schon oben erwähnt, bezeichnet man m als die Laserordnung. Ein Teil der Lasermode kann unter bestimmten Voraussetzungen allerdings auch aus der Wellenleiterebene herausgebeugt werden.

In Bild 3.11 a) ist die Situation einer im Wellenleiter propagierenden Lasermode (blauer Pfeil), welche durch Gitterbeugung ausgekoppelt wird (roter Pfeil) schematisch skizziert. Wann dies geschieht bzw. in welche Richtung, kann ebenfalls mithilfe von Formel (3.17) berechnet werden. Zu beachten ist, dass nur der Teil parallel zur Wellenleiterebene betrachtet werden muss. Dies führt unter der Annahme der Energieerhaltung $|\beta_1| = |\beta_2|$ zu folgender Formel:

$$\begin{aligned}
\beta_1 - \beta_{211} &= j \frac{2\pi}{\Lambda} & j &= 1, 2, \dots \\
\Leftrightarrow \beta_1 - \beta_1 \cdot \cos \theta &= j \frac{2\pi}{\Lambda} & \beta_1 &= \frac{m \cdot \pi}{\Lambda} \\
\Leftrightarrow \cos \theta &= 1 - \frac{j}{m} \cdot 2
\end{aligned} \tag{3.17}$$

Dabei handelt es sich bei j um die Beugungsordnung.

Es sei noch erwähnt, dass gewöhnlich aus dem Wellenleiter in Luft ausgekoppelt wird. Dies wird den Auskopplungswinkel hin zur Probennormalen vergrößern. Zudem kann es zur Totalreflexion kommen. Beides wird der Einfachheit halber ignoriert.

Aus der Formel (3.17) folgt zunächst, dass $j \leq m$ gelten muss, damit eine Lösung existiert. Für $j = m$ folgt zudem $\theta = -180^\circ$, was eine Beugung in entgegengesetzter Richtung bedeutet. Dies entspricht dem oben erwähnten Rückkopplungsmechanismus². Für $j = 1, \dots, m - 1$ kann die Lasermode aus der Ebene heraus auskoppeln.

Für 1. Ordnung-Laser existiert dementsprechend keine Auskopplung des Lichtes. Das Laserlicht kann nur genutzt werden, wenn am Rande des Resonators Licht entweichen kann. Für eine sinnvolle Nutzung wird deshalb das Substrat so gebrochen/hergestellt, dass der Resonator an der Kante oder in einen Wellenleiter endet. Es handelt sich um einen sogenannten seitenemittierenden Laser.

Im Gegensatz dazu emittieren die sogenannten oberflächenemittierenden Laser (zusätzlich) aus der Ebene heraus. Besonders attraktiv sind dabei die 2. Ordnung-Laser, welche senkrecht zu Oberfläche emittieren. Dies ist schematisch mit den entsprechenden Vektoren in Bild 3.11 b) dargestellt. Daneben ist auch ein 3. Ordnung-Laser abgebildet, welcher in 2. Ordnung ($\pm 70^\circ$) und 1. Ordnung ($\pm 110^\circ$) emittiert und in 3. Ordnung seine Rückkopplung besitzt. Der schwarze Kreis in den Bildern stellt die Ewald-Kugel und somit die Bedingung der Energieerhaltung dar.

Da die Auskopplung einem Resonatorverlust gleich kommt, ist zunächst eine höhere Laserschwelle für Laser höherer Ordnung zu erwarten. Die Auskopplung und auch die Rückkopplung werden allerdings extrem stark durch die Gitterform beeinflusst, was den Sachverhalt komplizierter gestaltet. So kann ein 3. Ordnung-Laser bei schlechter Auskopplung als seitenemittierender Laser eingesetzt werden, was in Hinblick auf einfach zu realisierende Strukturgrößen im anorganischen Bereich auch angewandt wurde [21].

² DFB-Laser m -ter Ordnung werden dementsprechend nach der für die Rückkopplung verantwortlichen m -ten Beugungsordnung klassifiziert.

3.3.4 Entstehung von Fernfeldern

Das Fernfeld, welches als winkelabhängige Emission einige Millimeter vom Laser entfernt gemessen wird, ist mathematisch gesehen die Fouriertransformierte der Nahfeldverteilung. Inwieweit das Nahfeld und damit das Fernfeld gezielt verändert werden kann, soll an Beispielen aus der Literatur näher erläutert werden. Dabei wird näher auf Ergebnisse von oberflächenemittierenden Lasern eingegangen. Das Fernfeld ist besonders interessant für eine spätere Anwendung. Oft ist ein Gaußprofil von Vorteil, wenn stark fokussiert werden soll oder ein Laserpunkt erwünscht ist.

Die Betrachtung von Auskopplungsmechanismen auf Basis der Bragg-Streuung, wie sie in Abschnitt 8.1.4 beschrieben werden, erklärt sehr gut die Abstrahlrichtung des Fernfeldes. Für quadratische Gitter konnten so auch Fernfelder gedeutet werden, welche zum Beispiel die Form eines ‚x‘ hatten [22].

Unabhängig von diesem Effekt ist für die Form des Fernfeldes das Nahfeld verantwortlich. Dies wiederum unterscheidet sich je nach dem zugehörigen Band in der photonischen Bandstruktur, welche in Abschnitt 3.3.2 behandelt wurde. Die Wahl des Bandes und somit die Form des Nahfeldes können in einem gewissen Rahmen beeinflusst werden.

Für quadratische 2. Ordnung-Laser existieren im Allgemeinen vier Bänder in der Γ -X-Richtung, auf welchen Lasertätigkeit möglich ist. Wie sich das Fernfeld der Laser durch die Wahl der Form der Gitterpunkte ändern kann, ist anschaulich für anorganische Laser in [23] beschrieben. Hier wurden neben Säulen auch Dreiecke als Gitterpunkte untersucht. Die Nahfeldverteilung einer Einheitszelle und die zugehörigen Fernfelder sind in Bild 3.12 zu sehen. Aufgrund der Rotationssymmetrie des Nahfeldes bei den Gitter-

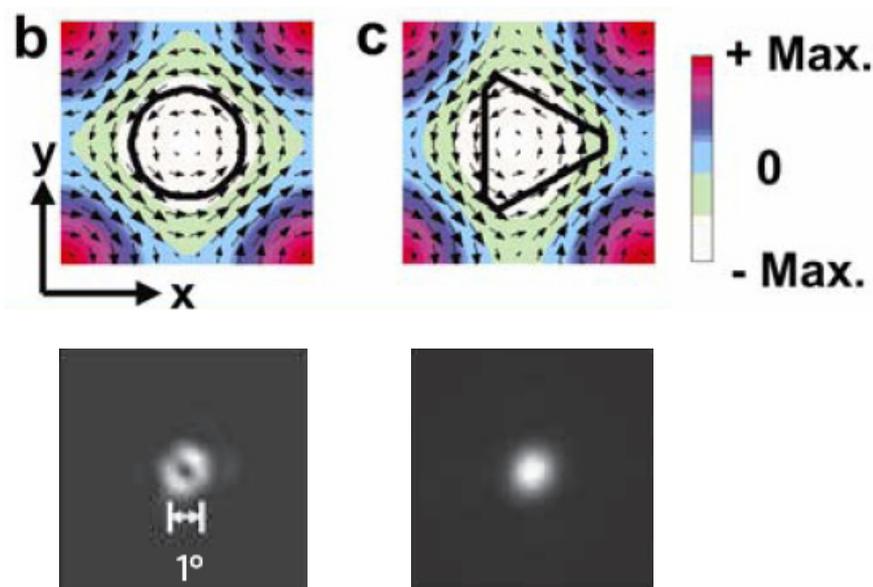


Bild 3.12: Nahfelder (oben) und Fernfelder (unten) quadratischer Gitterresonatoren mit einer Säule (links) und einem Dreieck (rechts) als Gitterpunkt. Die Amplituden der Magnetfelder sind farblich und die elektrischen Feldvektoren in der Ebene mit Pfeilen gekennzeichnet [23].

säulen und destruktiver Interferenz entsteht ein ringförmiges Fernfeld. Bei den Gitterdreiecken ist die Symmetrie verändert und es tritt im Fernfeld keine destruktive Interferenz in x -Richtung auf. Die Asymmetrie in diese Richtung spiegelt sich durch ein kreisförmiges Fernfeld wieder.

Die gezielte Nutzung dieser Fernfelder setzt voraus, dass die Laser auch auf dem zum Nahfeld zugehörigen Band anschwingen. Dies kann erreicht werden, wenn durch die Änderung der Gitterperiode die Bandstruktur so verschoben wird, dass nur das ausgewählte Band mit dem spektralen Gewinn überlappt. Für Materialien mit einem großen optischen Gewinn stellt sich dies jedoch teilweise als nicht möglich heraus, zumal die Bänder sehr eng beieinanderliegen können. Hier entscheidet dann die Resonatorgüte Q darüber, auf welchem Band Lasertätigkeit entsteht.

Die Lage der Bänder zueinander kann ebenfalls durch die Form der Gitterpunkte beeinflusst werden. So wird in [24] beschrieben, wie sich durch die Wahl elliptischer Säulen die vier Bänder zueinander stark verschieben lassen. Dadurch verändern sich auch die Nahfelder, was in diesem Fall dazu genutzt wurde, einen linear polarisierten Laserstrahl zu erzeugen.

Eine weitere interessante Möglichkeit das Fernfeld gezielt zu beeinflussen, wird ebenfalls in [23] vorgestellt. So kann das gezielte Einbringen von Phasensprüngen zur Modifikation des Fernfeldes genutzt werden.

Polarisation ringförmiger Moden

Ringförmige Moden treten häufig bei quadratischen Gittern auf, wie sie auch in dieser Arbeit verwendet wurden. Ihre Polarisation ist im Allgemeinen zirkular und kann zusätzlich zwischen TE- und TM-ähnlichen Moden unterteilt werden [23]. In Bild 3.13 ist dies schematisch aufgezeichnet. Eine TM-ähnliche Mode besitzt eine radiale Polarisationsrichtung, welche durch kleine Doppelpfeile im rot abgebildeten Fernfeld

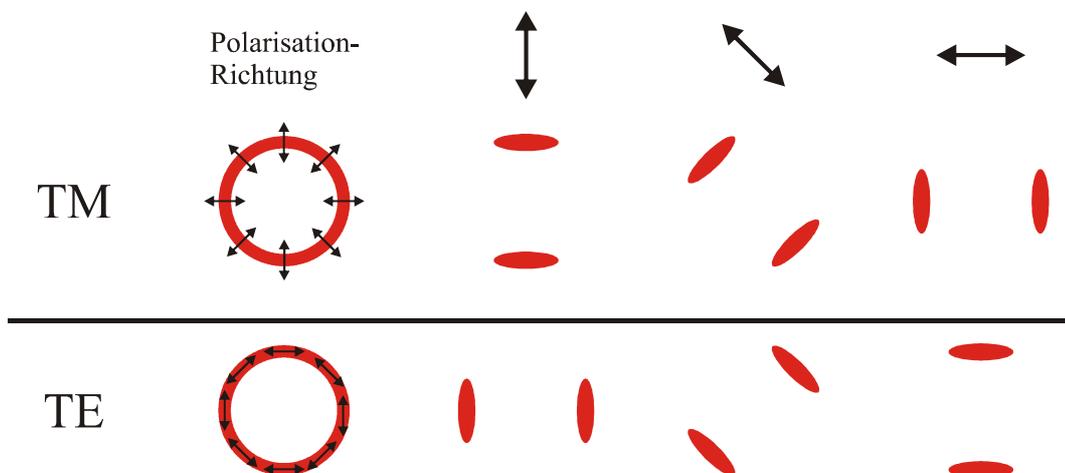


Bild 3.13: Es existieren zwei unterschiedliche Arten von ringförmigen Fernfeldern (rot), welche sich in der Polarisationsrichtung (kleine Doppelpfeile) unterscheiden. Dies macht sich bei der Betrachtung mit einem Polarisationsfilter (große Doppelpfeile) bemerkbar.

symbolisiert werden. Bei Betrachtung des Fernfeldes durch einen Polarisator bleiben dementsprechend die im Bild dargestellten Doppelhöcker übrig. Da die Polarisation bei den TE-Moden tangential verläuft, bleiben hier die um 90° gedrehten Doppelhöcker stehen, was eine Unterscheidung der beiden Modentypen zulässt.

3.3.5 DBR-Laser

Das Akronym DBR steht für Distributed Bragg Reflektor und beruht auf demselben Prinzip wie ein DFB-Laser. Allerdings ist hier nicht der gesamte Bereich strukturiert, sondern nur die seitlichen Begrenzungen des Lasers. Diese bilden durch ihre Funktion als Bragg-Spiegel einen Laserresonator. Zwischen diesen Spiegeln befindet sich das Lasermaterial, welches einen Wellenleiter bildet. Je nach Ausführung ist es möglich, einen der beiden Reflektoren gleichzeitig als Auskopplungselement zu nutzen. Die Abgrenzung zu einem DFB-Laser (mit Defekt) liegt darin, dass die Gitter eine passive Funktion haben und nicht zur Verstärkung beitragen.

Nach [25] sinkt die Laserschwelle für eine steigende Resonatorlänge. Seki et. al. stellten aus P-TPD:LD1 zahlreiche organische DBR-Laser im grünen Spektrum her und charakterisierten sie [26]. Die Laserschwelle fällt für Resonatorlängen bis zu 2 mm stark ab und sinkt danach nur noch schwach. Für die Länge der Bragg-Reflektoren zeigte sich ein qualitativ ähnliches Verhalten. Hier zeigten sich bis 0,5 mm-Reflektorlänge die größten Verbesserungen in der Laserschwelle. Den Kopplungskoeffizienten κ schätzen sie zu 70 cm^{-1} ab.

3.3.6 Weitere Resonatortypen

Neben den Photonischen-Kristallen wurde das Augenmerk in der Forschung auch auf zirkuläre und quasiperiodische Strukturen gelegt. Bei beiden steht der Gedanke im Hintergrund, die Symmetrie zu erhöhen und so eine noch bessere räumliche Rückkopplung zu erreichen. Zirkuläre Gitter bestehen aus konzentrischen Kreisen, was eine Rückkopplung in jede beliebige Richtung ermöglicht. Zudem sind auch neue Modenformen denkbar [27]. Bei den quasiperiodischen Strukturen existiert zwar eine Fernordnung, aber der Kristall ist nicht mehr translationsinvariant wie bei einem Kristall. Dadurch sind auch Rotationssymmetrien möglich, welche größer als sechs sind. Hier konnte mit einer zwölfzähligen Symmetrie, dem sogenannten Penrose-Muster, Lasertätigkeit in organischen Festkörpern gezeigt werden [28]. Beide Resonatortypen stellen bei der Herstellung eine große Herausforderung dar und konnten die in sie gesetzten Erwartungen einer niedrigen Laserschwelle bis heute nicht erfüllen.

3.4 Optisches Pumpen

Als Lichtquelle für das optische Pumpen von organischen Lasern gibt es zahlreiche Möglichkeiten. Grundvoraussetzung ist, dass das Lasermaterial das Licht gut absorbiert. Weitere Vorteile sind eine kurze Pulsdauer und gute Fokussierbarkeit. Im Folgenden

werden die Einflüsse der Pumpimpulslänge und –polarisation sowie dreier Lichtquellen vorgestellt.

3.4.1 Einfluss der Impulslänge

Je nach Material kann die Pumpimpulslänge einen entscheidenden Einfluss auf die Laserschwelle haben. Optimal ist eine instantane Herstellung der Besetzungsinversion, das heißt, es sollten sich nach Abschluss des Pumpvorganges möglichst viele Elektronen im angeregten Zustand befinden. Dies hängt insbesondere vom Verhältnis der Fluoreszenzlebensdauer zur Impulslänge ab. Falls diese identisch sind, befinden sich nach Abschluss des Pumpvorganges nur noch 63 % aller angeregten Elektronen im angeregten Zustand [29]. Dies ist theoretisch durch höhere Leistungsdichten ausgleichbar, doch besteht dann die Gefahr, das organische Material zu zerstören.

3.4.2 Einfluss der Pump polarisation

Da Laserlicht sehr gut fokussierbar ist, bieten sich Laser hervorragend als Pumpquelle an. Die meisten Laser emittieren stark polarisiert, was Einfluss auf die Laserschwelle haben kann. So zeigen Untersuchungen an organischen DFB-Lasern, welche aus DCM in einer Polymermatrix bestehen, dass sich die Laserschwelle um den Faktor 3 in Abhängigkeit von der Polarisationsrichtung ändern kann [30]. Der Grund dafür liegt in der Abstrahlcharakteristik eines Dipols. Bei einer Polarisationsrichtung des Pumpstrahls senkrecht zum Gitter emittieren die Moleküle bevorzugt parallel zum Gitter. Da hier keine periodische Modulation vorliegt, können diese Photonen nur unzureichend für die Lasertätigkeit genutzt werden.

Dieser Effekt ist für das Förster-Transfer-System Alq₃:DCM allerdings nicht zu beobachten. So ergaben Messungen an DFB-Lasern keine Abweichung, wenn die Pump polarisation um 90° gedreht wurde.

3.4.3 Diodengepumpte Festkörperlaser (DPSS-Laser)

Das Akronym DPSS entstammt dem Englischen und bedeutet *Diode Pumped Solid State*. Bei dieser Klasse von Lasern werden Festkörperlasermaterialien mithilfe von Laserdioden gepumpt. Sie bieten den Vorteil eines kompakten Gesamtsystems. Zudem haben diodengepumpte Festkörperlaser einen hohen Wirkungsgrad und können eine gute Strahlqualität besitzen. Für diese Arbeit sind besonders die Neodym dotierten Festkörper interessant. Der bekannteste Vertreter ist der Nd:YAG-Laser. Seine kräftigste und bekannteste Ausgangswellenlänge liegt bei 1064 nm und muss für das Pumpen von organischen Lasern noch auf 532 nm oder 355 nm frequenzverdoppelt bzw. frequenzverdreifacht werden. Im Bereich der gütegeschalteten Laser sind Systeme mit Impulslängen unter 1 ns erhältlich. Neben dem Yttrium-Aluminium-Granat (YAG) wird als Wirtsmaterial auch auf Yttrium-Vanadat-Kristalle (YVO₄) zurückgegriffen. Diese weisen eine höhere Pumplichtabsorption auf und lassen zudem eine höhere optische

Verstärkung zu. Die Lebensdauer solcher Systeme liegt bei über 10.000 Stunden. Ein Nachteil dieser Lasersysteme ist die Einschränkung auf die Wellenlänge von 355 nm und 532 nm. Dies kann zu Problemen führen, falls der organische Laser hier nur schlecht oder gar nicht absorbiert.

3.4.4 Laserdioden

Der direkten Verwendung von Laserdioden als Pumpquelle standen bis vor kurzem vor allem kleine Pulsleistungen bei Lasern im sichtbaren Bereich entgegen. Durch Verbesserung der Dioden und durch Herstellung von extrem niederschwelligen organischen Lasern ist es im Jahr 2006 gelungen, GaN-Laserdioden als Pumpquelle erfolgreich zu verwenden ([31], [32]). Laserdioden sind, aufgrund ihrer extrem kompakten Bauweise und nicht zuletzt auch wegen der niedrigen Kosten, eine ideale Pumpquelle für organische Laser. Auf die Möglichkeit, kompakte, hybride Lasersysteme zu bauen, welche aus einer anorganischen Laserdiode und einem organischen Laser bestehen, wird im Ausblick eingegangen. Nachteile der Laserdioden sind derzeit noch die eingeschränkte Verfügbarkeit verschiedener Pumpwellenlängen sowie die niedrigen Pulsleistungen.

3.4.5 LEDs

Eine noch kostengünstigere Pumpquelle würden LEDs darstellen. Sie decken mittlerweile das gesamte sichtbare Spektrum bis hinunter zur UV-Strahlung ab. So würde sich die optimale Abstimmbarkeit der Pumpquelle auf das Absorptionsmaximum des Lasermaterials bieten. Da auch eine LED mit 15-30 nm schmalbandig emittiert, sollte es nicht zu Aufheizeffekten wie bei blitzlampengepumpten Farbstofflasern kommen. Eher ist sogar eine bessere Absorption wahrscheinlich. Ein großer Nachteil einer LED ist die, im Vergleich zu einem Laser, schlechtere Fokussierbarkeit. Sie lässt sich nicht ohne Verluste unter der Fläche ihres emittierenden Bereiches fokussieren. Dies wird auch als Étendue bezeichnet und fällt insbesondere deshalb ins Gewicht, da die heutigen Pulsleistungen noch nicht ausreichen, um die Pumpenergiedichte organischer Laser zu erreichen. Zudem wird eine höhere Schwelle erwartet, da sich die Pulslängen mit über 30 ns negativ auswirken. Durch stete Entwicklung der LED-Technik und verbesserter organischer Laser sollte aber in den nächsten Jahren die Lücke geschlossen werden.

3.4.6 Elektrisches Pumpen

Der Weg von der OLED zur organischen Laserdiode scheint auf den ersten Blick nicht schwer zu sein. Bei genauerer Betrachtung machen allerdings unterschiedliche Verlustmechanismen die Realisierung extrem schwer. Ein großes Problem stellen dabei die elektrischen Kontakte dar, welche die geführte Mode stark absorbieren. Um dieses Problem zu lösen, gibt es zwei Hauptansätze. Der erste verzichtet auf metallische Kontakte und versucht über transparente leitfähige Oxide den Strom in eine Laserdiode

zu pumpen. Dies wird mit erheblich schlechteren elektrischen Eigenschaften zur Elektronen- und Lochinjektion erkauft. Zudem weisen auch diese Kontaktmaterialien hohe optische Verluste auf. Im zweiten Ansatz wird zu dicken Schichten übergegangen, sodass die potenzielle Lasermode nur noch einen vernachlässigbaren Überlapp mit den Metallkontakten hat. Dies erkauft man sich allerdings mit extrem hohen Spannungen.

Zudem vernichten weitere Prozesse, sogenannte Annihilationsprozesse, welche bei optisch gepumpten Systemen nicht ins Gewicht fallen, die angeregten Zustände strahlungslos.

4 Herstellungsprozesse

Die Herstellung organischer Laser gliedert sich in mehrere Schritte. Neben dem Aufbringen des Lasermaterials und möglicher funktionaler Schichten muss auch eine optische Rückkopplung für die Laser erzeugt werden. Die Rückkopplung wird in dieser Arbeit durch Photonische-Kristall-Resonatoren bewirkt, auf deren Herstellung speziell eingegangen wird.

Prinzipiell bildet die aktive Schicht einen Wellenleiter, in welchem die Lasermode geführt wird. Durch Strukturierung des Trägersubstrates oder der Laserschicht kann der Resonator erzeugt werden (s. Bild 4.14). Der Themenkomplex der direkten Strukturierung von aktiven Schichten wird gesondert in Abschnitt 7 zusammen mit der Laserinterferenzablation behandelt. Im Folgendem wird die Herstellung von Resonatoren in ein Trägersubstrat beschrieben. Zusätzlich wird auf Vervielfältigungsmethoden eingegangen, welche eine günstige Herstellung in großen Stückzahlen ermöglicht und den Vorteil einer Systemintegration der Laser bieten kann, wie sie im Ausblick beschrieben wird. Einen Überblick über Herstellungs- und Vervielfältigungsmethoden gibt Bild 4.15.

Im Anschluss daran werden die Probenreinigung und das Aufbringen der Schichten erläutert.

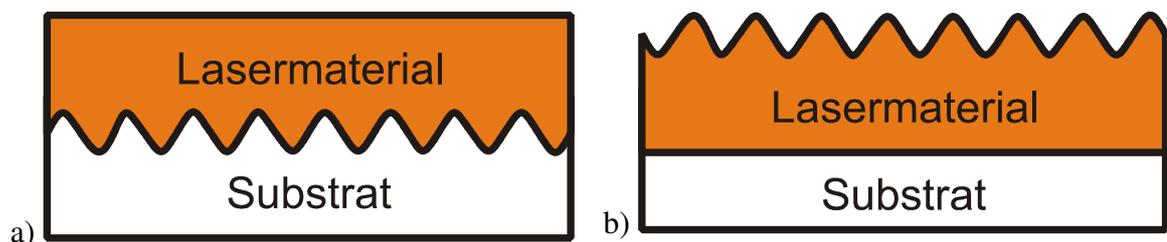
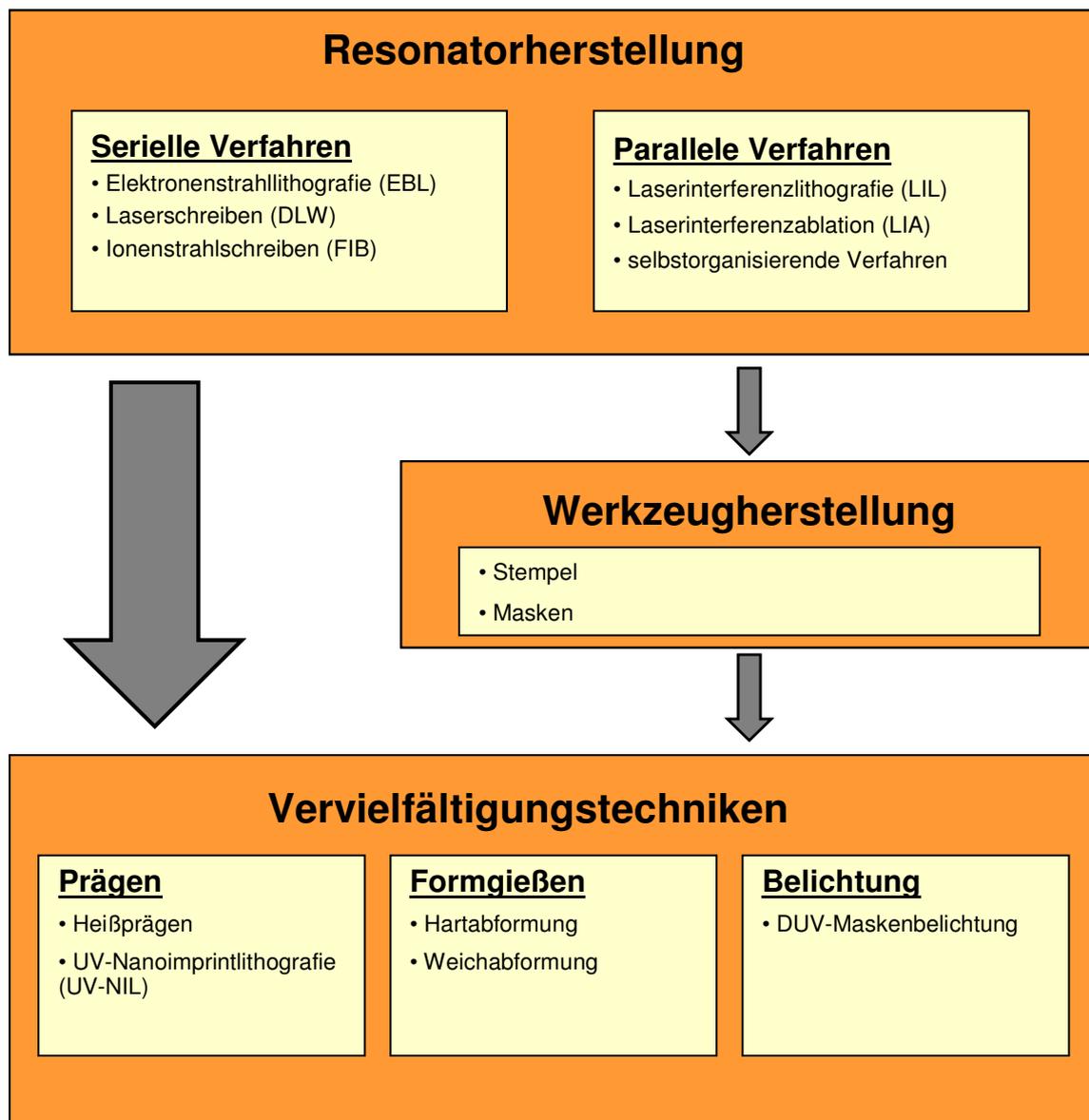


Bild 4.14: Organischer Halbleiterlaser bei denen das Trägersubstrat (a) bzw. die aktive Schicht (b) strukturiert wurden.

4.1 Herstellung von Resonatoren

Die Verfahren zur Herstellung von Resonatoren lassen sich grob in zwei Klassen einteilen. Auf der einen Seite stehen serielle Verfahren, welche die Strukturen nacheinander erzeugen. Sie haben den Vorteil, auch abweichend von der Periodizität der Resonatoren, gezielt Defekte einzubauen. Zu dieser Klasse gehört neben der Elektronenstrahlolithografie und dem direkten Laserschreiben auch das Ionenstrahl-schreiben, auf welches hier nicht näher eingegangen wird. Durch die serielle Art der Erzeugung sind diese Verfahren sehr zeitintensiv, weshalb sie bevorzugt bei kleineren Resonatorfeldern eingesetzt werden.



EBL: electron-beam lithography

DLW: direct laser writing

FIB: focused ion beam

DUV: deep ultraviolet

Bild 4.15: Übersicht über verschiedene Methoden der Resonatorherstellung und deren Vervielfältigung.

Für größere Felder bieten sich parallele Verfahren an, welche den gesamten Resonator gleichzeitig herstellen. Hier sind insbesondere die Laserinterferenzlithografie und -ablation zu nennen.

4.1.1 Laserinterferenzlithografie

Bei der Laserinterferenzlithografie (LIL) belichtet ein Laser ein Interferenzmuster in einen fotoempfindlichen Lack (Resist). Das Schema eines LIL-Aufbaus ist in Bild 4.16 a) zu sehen. Der Laserstrahl wird aufgespalten und beide Zweige werden

unter einem Winkel α auf dem Resist überlagert. Beide Strahlen interferieren und bilden ein lineares hell-dunkel Muster. Dies führt zu einer unterschiedlich starken Belichtung des Lackes (s. Bild 4.16 a). Nach der Belichtung wird der Lack entwickelt. Je nach Verwendung eines Negativ- oder Positiv-Resists bleiben die belichteten Bereiche stehen oder werden ausgelöst. Die Struktur kann entweder direkt als Laserresonator genutzt werden oder sie wird mithilfe von nass- oder trockenchemischen Prozessen auf das Trägersubstrat übertragen.

Ein Vorteil dieses Verfahrens ist ein einfacher Aufbau, der je nach Belichtungsfläche allerdings extrem sensibel sein kann. Am Fraunhofer Institut für Solare Energiesysteme (ISE) in Freiburg werden mit diesem Verfahren Gitter bis zu 1 m²-Fläche hergestellt. Neben der Möglichkeit der großflächigen Belichtung ist die kurze Belichtungszeit ein weiterer Vorteil des Verfahrens im Vergleich zum Elektronenstrahlschreiben. Die Anforderungen an den Laser sind eine hohe räumliche Kohärenz und Stabilität. Bei der direkten Überlagerung der beiden Teilstrahlen lassen sich Gitterperioden bis zur Hälfte der Laserwellenlänge erzeugen. Durch die Positionierung eines Prismas mit dem Brechungsindex n_{Prisma} auf dem Lack lässt sich die Periode noch einmal um den Faktor $1/n_{\text{Prisma}}$ verringern.

Die Drehung des Substrates um 90° bzw. 60° erlaubt es auch, quadratische und trianguläre Gitter zu erzeugen. Alternativ dazu können auch mehr als zwei Strahlen überlagert werden.

Ein Nachteil dieses Verfahrens ist die Beschränkung der Auswahl möglicher Strukturen. So stellt z. B. die Herstellung gezielter Defektstrukturen ein Problem dar. Durch die Kombination mit einem Elektronenstrahlschreiber [33] oder der Laserlithografie [34] kann dies nachträglich geschehen.

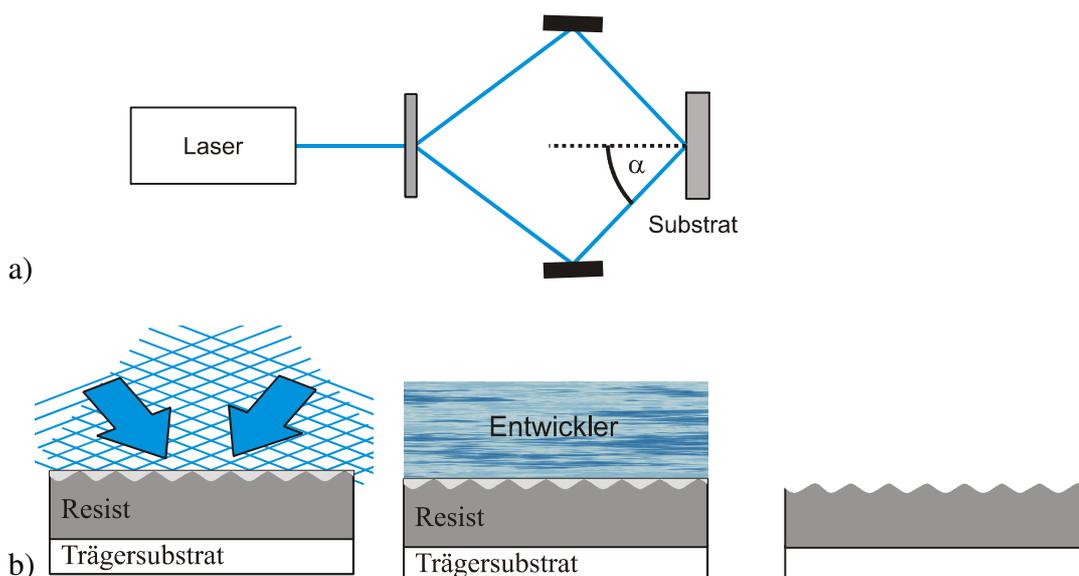


Bild 4.16: a) Schema eines LIL-Aufbaus.

b) Herstellungsschritte in der LIL.

4.1.2 Elektronenstrahl-Lithografie

Der Vorteil der Elektronenstrahl-Lithografie liegt in der gezielten Herstellung beliebiger Strukturen im Nanometer-Bereich. Dabei wird ein elektronenempfindlicher Lack mit einem Elektronenstrahl belichtet. Der Strahl kann über eine Elektronenoptik bewegt und positioniert werden. Über die Belichtungsdauer lassen sich so unterschiedlich große Bereiche belichten. Da traditionell nicht das Substrat sondern der Strahl bewegt wird, ist die Belichtungsfläche begrenzt. Es besteht zwar die Möglichkeit, viele Felder aneinanderzureihen, allerdings kommt es dann zu Anpassungsfehlern in der Größenordnung von 4 nm. Durch die Digitalisierung der Positionen können zusätzlich systematische Fehler entstehen, insbesondere bei triangulären Strukturen. Für einen Elektronenstrahl-Schreiber auf dem heutigen Stand der Technik bedeutet dies eine Anfahrgenauigkeit von 1,25 nm für ein $(160 \mu\text{m})^2$ -Feld oder 50 nm für ein $(800 \mu\text{m})^2$ -Feld. Einige der Nachteile lassen sich minimieren bzw. auch vermeiden. Da es sich bei dieser Belichtungsmethode um einen seriellen Prozess handelt, dauert die Belichtung großer Felder im Vergleich zur LIL sehr lange. Mit der Elektronenstrahl-Lithografie können Strukturen mit Gitterperioden von bis zu 130 nm hergestellt werden.

Die in dieser Arbeit verwendeten Resonatoren wurden an der Physikalisch Technischen Bundesanstalt (PTB) in Braunschweig nach den vorgegebenen Strukturen hergestellt. Als Grundlage dient ein Siliziumwafer mit einer 600 nm dicken Oxid-Schicht. Diese Schicht ist nötig, da reines Silizium stark im sichtbaren Bereich absorbiert. In den ersten Schritten wird eine PMMA-Schicht aufgeschleudert, mit der gewünschten Struktur belichtet und anschließend entwickelt. Nach dem Aufdampfen einer 30 nm dicken Chrom-Schicht kann das restliche PMMA entfernt werden. Zurück bleibt ein Negativbild aus Chrom. Es dient als Maske in der folgenden Trockenätzung mit einem CHF_3 -Plasma. Bei einer Ätzrate von 1 nm/s entsteht die 70 nm tiefe Struktur.

4.1.3 Direktes Laserschreiben

Beim direkten Laserschreiben fährt der Laserstrahl seriell die gewünschte Struktur in

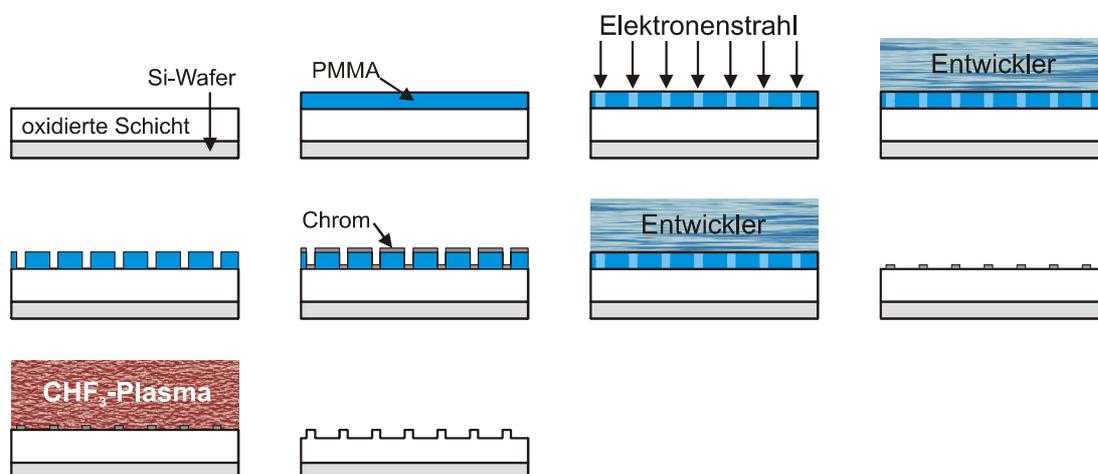


Bild 4.17: Prozessschritte der Elektronenstrahl-Lithografie, wie sie an der PTB durchgeführt wurden.

einem Resist ab und bietet so die Vorteile der Elektronenstrahlolithografie. Einschränkungen in der Fokussierbarkeit eines Laserstrahls und somit der Strukturgröße können mithilfe der Zweiphotonenabsorption (2PA) minimiert werden. Dabei besitzen die vom Laser emittierten Photonen die Hälfte der Energie, welche zur Belichtung nötig ist. Bei der 2PA werden zwei Photonen gleichzeitig absorbiert. Sie wirken wie ein Photon mit der zweifachen Einzelenergie. Da es sich bei der 2PA um einen nicht-linearen Prozess handelt, sind hohe Intensitäten nötig, welche nur im direkten Fokus erzeugt werden können. Zudem bildet sich eine scharfe Intensitätsgrenze aus, ab der der Lack erst absorbiert und somit belichtet wird. Im Unterschied zu der Einphotonenabsorption kommt es unterhalb der Intensitätsgrenze, auch bei längerer Belichtungszeit, nicht zu einer Belichtung. Bild 4.18 zeigt schematisch die Intensitätsverteilung zweier Gaußstrahlen und die Absorptionsgrenze. Wie gerade beschrieben, ist für die Belichtungsgröße nur die Breite des Intensitätsprofils oberhalb der Grenze entscheidend.

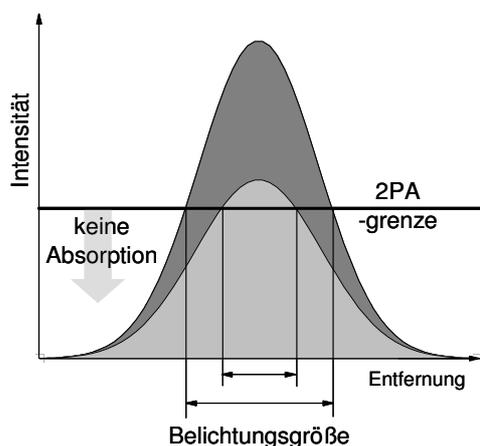


Bild 4.18: Intensitätsverteilung zweier gaußverteilter Laserstrahlen. Abhängig von der Zweiphotonenabsorptionsgrenze können unterschiedlich große Strukturen belichtet werden.

4.1.4 Selbstorganisierende Verfahren

Die treibende Kraft für selbstorganisierende Systeme kann unterschiedlich sein. An dieser Stelle wird nur kurz auf die Herstellung spezieller Gummiopale eingegangen, da sie im Ausblick erwähnt werden.

Opale sind dreidimensionale Photonische-Kristalle mit einer kubisch flächenzentrierten Symmetrie. Das heißt, an jedem dieser Gitterpunkte sitzt eine künstliche Kugel. Diese besteht, im Falle der im Ausblick verwendeten Substrate, aus einem harten polystyrenen Kern (PS), umhüllt mit Polymethylmethacrylat (PMMA) und einer polyethylacrylaten (PEA) Mantelfläche (s. Bild 4.19 a).

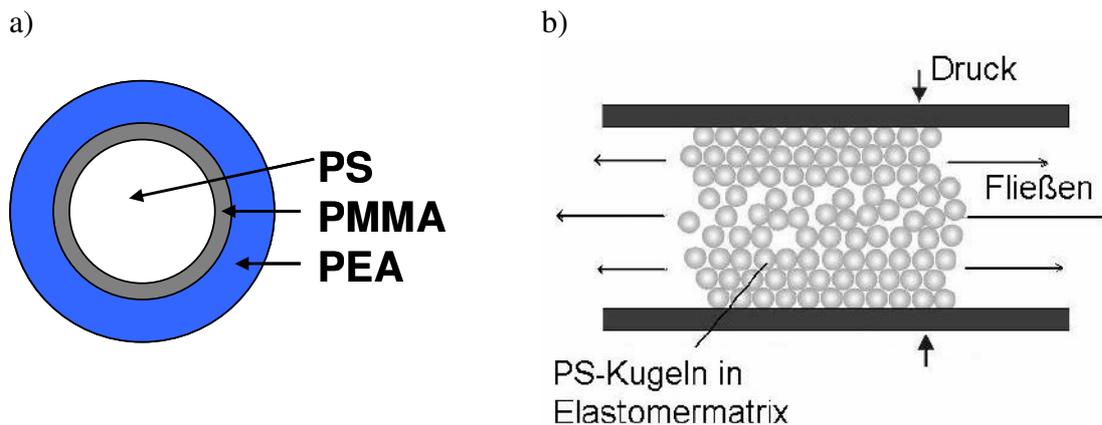


Bild 4.19: a) Aufbau einer „Gummi“-Kugel.

b) Die Gummi-Kugeln werden mithilfe zweier Platten zusammengepresst. An den Grenzschichten bildet sich eine periodische Struktur aus, während es in der Mitte zu Fließbewegungen kommt [35].

Die kristalline Struktur entsteht in mehreren Schritten, bei denen unter anderem Druck (s. Bild 4.19 b) und thermische Energie auf einen zunächst ungeordneten Film einwirken [35]. Bei der Herstellung von Laserresonatoren ist es wichtig, dass sich insbesondere an den Grenzflächen eine kristalline Struktur ausbildet. Es handelt sich in diesem Fall um ein hexagonales Gitter.

4.1.5 Vervielfältigungstechniken

Wurde ein optimales Design für Laserresonatoren gefunden, bietet es sich an, diese auf einfache Weise reproduzierbar zu vervielfältigen. Dazu werden je nach Verfahren unterschiedliche Werkzeuge benötigt. Bei einigen Verfahren können direkt die Substrate verwendet werden, welche mit den oben beschriebenen Techniken hergestellt wurden. Ansonsten wird ein Zwischenschritt notwendig, in welchem ein passendes Werkzeug erzeugt werden muss.

Der LIGA-Prozess (Lithografie-Galvanik-Abformung) stellt einen solchen Gesamt-ablauf dar [36]. Dieser wurde am heutigen IMT (Institut für Mikrostrukturtechnik) am Forschungszentrum Karlsruhe entwickelt und wird in Projekten mit dem LTI zusammen für die Herstellung von Laserstrukturen eingesetzt. Ursprünglich handelte es sich um Röntgenlithografie, welche aber auch durch andere Lithografiertechniken ersetzt werden kann. Insbesondere die Herstellung von Strukturen in PMMA ist eine Domäne des IMTs.

Werkzeugherstellung

Da viele verwendeten Resonatormaterialien für eine Vervielfältigung nicht stabil genug sind, werden sie in einem Zwischenschritt auf stabilere Materialien abgeformt. Ein häufig eingesetztes Verfahren ist die Herstellung eines Nickelstempels in einem Galvanikbad (s. Bild 4.20). Dazu müssen die ursprünglichen Formen gegebenenfalls noch eine leitfähige Schicht erhalten. Anschließend werden sie in das Galvanikbad

eingetaucht. Die Anode besteht aus Nickel, während das Substrat als Kathode fungiert. Durch das Anlegen einer Spannung oxidieren die Nickelatome an der Anode und wandern durch das Galvanikbad zum Substrat. Dort reduzieren die Nickelatome wieder, setzen sich an die Probe und formen so die Oberfläche ab. Der entstandene Nickelstempel kann dann in den unten beschriebenen Verfahren genutzt werden.

Für die Vervielfältigung mithilfe einer Schattenbelichtung ist eine entsprechende Maske notwendig. Diese wird zum Beispiel auf einer mit Chrom beschichteten Quarzplatte mit den oben beschriebenen Methoden erzeugt.

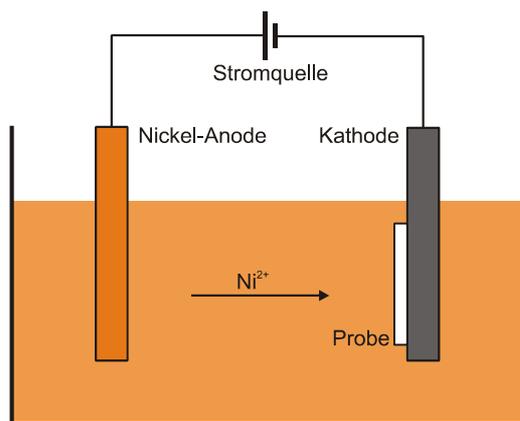


Bild 4.20: Schema eines Galvanikbades zur Herstellung von Nickelstempeln.

Nanoimprint

Der Begriff Nanoimprint umfasst unter anderem das Heißprägen (engl. *hot embossing*) und die UV-Nanoimprint-Lithografie (UV-NIL). Bei beiden Verfahren dient eine Urform, der sogenannte Master-Stempel, als Prägewerkzeug. Grundlage sind die oben beschriebenen direkt erzeugten Lasersubstrate bzw. ein daraus hergestelltes Abformwerkzeug. Die Prozessschritte für das Heißprägen und die UV-NIL sind in Bild 4.21 dargestellt.

Für das Heißprägen wird ein Thermoplast³ benötigt, welcher mit dem Stempel auf 60-80 °C überhalb der Glasübergangstemperatur T_g erhitzt wird. Anschließend wird der Stempel unter hohem Druck (2-8 MPa) in das Plastik gepresst. Nach dem Abkühlen kann die Urform wieder entfernt werden. Die Abformung dient dann direkt als Lasersubstrat.

Für die UV-NIL benötigt man einen UV-vernetzbaren Fotoresist, der auf das Trägersubstrat aufgebracht wird. Anschließend drückt man den Stempel in den Lack hinein, wartet bis sich dieser verteilt hat und führt eine UV-Flutbelichtung zum Aushärten des Resists durch. Grundvoraussetzung ist, dass entweder das Substrat oder das Prägewerk-

³ Thermoplast ist ein Kunststoff, der sich durch Erwärmen oder Ausübung einer Kraft dauerhaft verformt. Thermoplast wird oft auch als Plastik bezeichnet, wobei im umgangssprachlichen Gebrauch Duroplasten und Elastomere mit eingeschlossen werden [3].

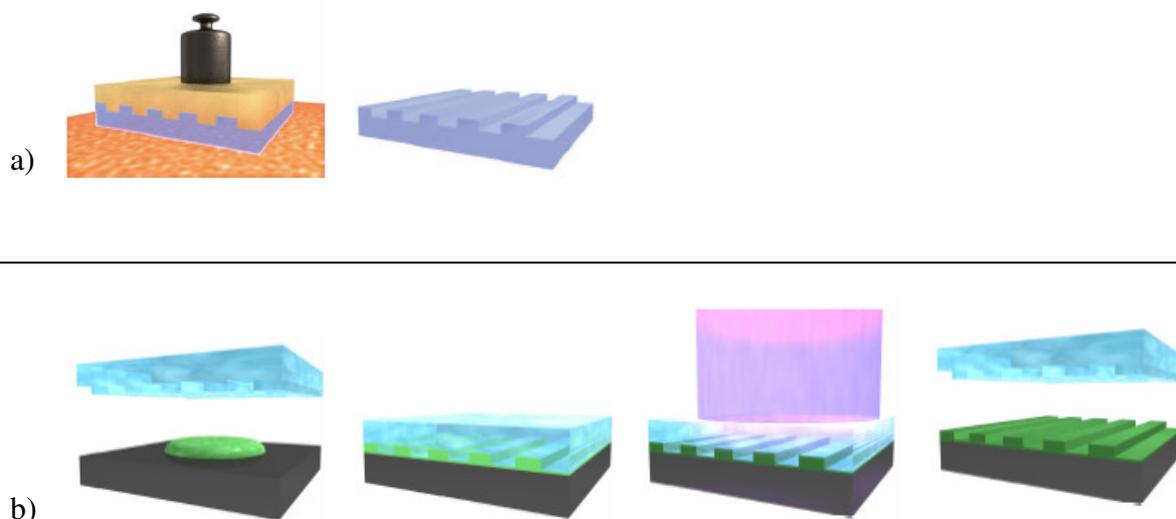


Bild 4.21: Schemata der einzelnen Prozessschritte beim (a) Heißprägen und (b) der UV-NIL [37]. Näheres siehe Text.

zeug transparent bei der Bestrahlungswellenlänge ist. Nach der Aushärtung kann das abgeformte Bauteil wieder vom Stempel getrennt werden.

Gussverfahren

Der Hauptunterschied zwischen Nanoimprint-Verfahren und Gussverfahren besteht darin, dass bei Gussverfahren kein Druck ausgeübt wird. Hier wird die Urform ausgegossen und anschließend ausgehärtet. Der Übergang zwischen beiden Verfahren kann fließend sein. So umschreibt die SFIL (step-and-flash imprint lithography) dieselben Prozessschritte wie die UV-NIL (s. Bild 4.21 b). Der Unterschied ist lediglich, dass bei der UV-NIL das Substrat angedrückt wird.

Bei den Gussverfahren kann zudem zwischen einer Hart- und einer Weichabformung unterschieden werden, je nach dem Ausgangsmaterial des Stempels. Die SFIL gehört daher zu der Klasse der Hartabformung. Bei der Weichabformung dient häufig PDMS (poly-(dimethylsiloxane)) als Stempelmaterial.

Drucktechnik

Bei Drucktechniken wird das Prägewerkzeug mit einem Material benetzt und auf ein Substrat gestempelt. Diese Technik wurde allerdings noch nicht in der Herstellung von Laserresonatoren eingesetzt.

Für eine kostengünstige Produktion der meisten Verfahren muss gewährleistet sein, dass der Stempel und die erzeugte Form keine Schädigung erfahren. Zu diesem Zweck werden bei der UV-NIL häufig Antihafschichten auf dem Stempel verwendet, was ein Lösen des Prägewerkzeuges verbessert.

Ist eine Schädigung der Master-Struktur nicht auszuschließen, bietet sich eine Zwischenabformung in einem Material an, welches bereits beherrscht wird. Dies ist

insbesondere dann ratsam, wenn neue Lacke getestet werden. Die Zwischenabformung kann auch zum Einsatz kommen, wenn kein transparenter Stempel für die UV-NIL oder die SFIL zur Verfügung steht. So kann dieser dann mit dem Heißprägen erzeugt werden.

Die in Abschnitt 6.4 und 6.5 verwendeten linearen Strukturen basieren auf einem laserinterferenzlithografisch hergestellten Gitter. Nach der galvanischen Übertragung in einen Nickelstempel wurden mithilfe der UV-NIL Gitter in Acryllack gestempelt. PET diente dabei als Trägerfolie, was ohne Probleme ein Zuschneiden des Substrates erlaubt und zusätzlich noch transparent ist [34]. Die Gitter wurden durch unsere Projektpartner am Fraunhofer ISE hergestellt.

Maskenbelichtung

Eine weitere Möglichkeit eine Struktur zu vervielfältigen stellt die Maskenbelichtung dar. Hier wird eine Schattenmaske auf ein lichtempfindliches Substrat gelegt. Das Substrat muss dann nach der Belichtung eventuell wieder entwickelt werden.

Einen näheren Einblick in die Nutzung von Vervielfältigungsverfahren für organische Laser geben [38] und [39].

4.2 Probenherstellung

Für die Herstellung eines Lasers müssen die Schichten auf das Lasersubstrat aufgebracht werden. Dies wurde im Rahmen der Arbeit entweder durch Aufschleudern oder Aufdampfen realisiert. In den folgenden Abschnitten werden diese Prozesse im Detail erläutert. Dabei wird auch auf die Säuberung der verschiedenen Substrate eingegangen.

4.2.1 Probenpräparation

Als Standardprozess für die Säuberung der Glassubstrate dient ein jeweils 10 minütiges Ultraschallbad in Aceton und Isopropanol. Nach der Reinigung mit Reinstwasser liegen die Substrate zusätzlich 2 Minuten in einem Sauerstoffplasma. Um eine Schädigung der elektronenstrahlithografisch hergestellten Substrate zu vermeiden, wird das Ultraschallbad nur bei geringer Leistung betrieben. Die Substrate aus Acryllack werden nur mit Stickstoff abgeblasen.

4.2.2 Aufdampfen

Es existieren zahlreiche Aufdampftechniken, die wiederum in vielen Modifikationen verwendet werden. Für diese Arbeit sind insbesondere das thermisch kontrollierte Aufdampfen und das Elektronenstrahlverdampfen von Bedeutung. Bei beiden Prozessen wird das aufzudampfende Material erhitzt und verdampft bzw. sublimiert. Das Material kondensiert schließlich auf dem Substrat. Damit die Aufdampfteilchen ungehindert das

Substrat treffen und sich möglichst wenig Fremdatome in der entstehenden Schicht einlagern können, muss im Hochvakuum gearbeitet werden.

Organik

Im Gegensatz zu anorganischen Materialien, wie Aluminium, kann das organische Aufdampfmaterial bei zu hohen Aufdampftemperaturen zerstört werden. Deswegen muss die spätere Aufdampftemperatur behutsam angefahren und ein Übersteuern sollte vermieden werden. Zu diesem Zweck stand eine Aufdampfanlage der Firma *Lesker* zur Verfügung. Ihr Pumpensystem ist so ausgelegt, dass während des Aufdampfens ein Hintergrunddruck von $< 3 \times 10^{-5}$ Pa herrschte. Der Innenraum des Vakuumrezipienten ist in Bild 4.22 a) zu sehen.

Die Anlage verfügt über vier temperaturüberwachte Quellen, aus denen die organischen Materialien verdampft wurden. Die Quelle links vorne im Bild ist ohne Wärmereflektor zu sehen. Man erkennt den zylindrischen Aufbau der Quelle. In ihrer Mitte wird ein Tiegel mit dem Aufdampfmaterial eingeführt. Dieser steht auf einer Spitze, welche gleichzeitig als Temperatursensor fungiert. Um den Tiegel herum sind Heizwendeln angebracht, welche für eine gleichmäßige Erhitzung des Tiegels sorgen. Die Temperatur des Tiegels wird mithilfe einer PID-Schaltung geregelt.

Die Aufdampfgeschwindigkeiten und die Schichtdickenkontrolle überwachen für jede Quelle getrennt Schwingquarze. Der Schwingquarzmonitor kann direkt die Temperaturregelung steuern, wodurch der Aufdampfprozess automatisierbar ist.

Der Substrathalter rotiert während des Aufdampfens, was zu einer homogeneren Schichtverteilung führt. Zwischen der Mitte und dem äußeren Rand können dennoch Abweichungen in der Schichtdicke von bis zu 10 % vorliegen.

Zur Herstellung von dotierten Schichten wurde gleichzeitig aus zwei Quellen aufgedampft. Zusätzlich wurde zwischen den Schwingquarzen der Quellen noch eine Schutzwand eingehängt, um eine Beeinflussung der Schwingquarze durch die jeweils andere Quelle zu verhindern.

Dielektrika

Im Gegensatz zu organischen Materialien müssen für die meisten dielektrischen Materialien extrem hohe Aufdampftemperaturen erreicht werden. Ein Verfahren, das dies ermöglicht, ist das Elektronenstrahlverdampfen. Das Funktionsprinzip ist in Bild 4.22 b) zu sehen. Aus einer Elektronenquelle werden Elektronen emittiert und anschließend beschleunigt. Dies ist bei der verwendeten Aufdampfanlage durch eine Glühspule und einen Austrittsspalt, welcher auf einem positiven Potenzial liegt, realisiert. Durch ein statisches magnetisches Feld werden die Elektronen auf eine Kreisbahn gezwungen und somit auf das zu verdampfende Material gelenkt. Das Material kann sich je nach Stromstärke des Elektronenstroms erhitzen und verdampfen. Mit diesem Verfahren können Temperaturen von über 1800 °C erreicht werden. Um ein Schmelzen der Umgebung zu

a)



b)

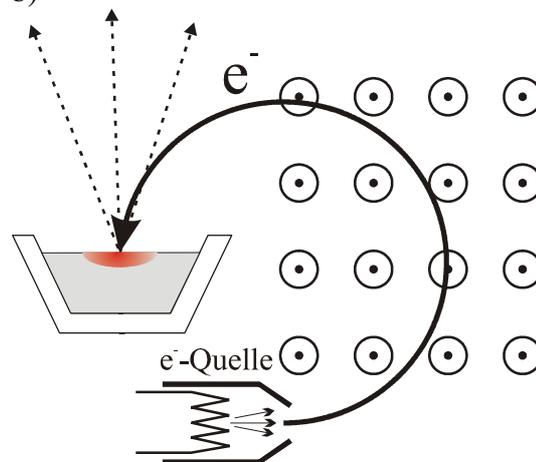


Bild 4.22: a) Innenleben der Aufdampfanlage der Firma Lesker. Zu erkennen sind vier thermische Quellen, wovon die Abdeckung der Quelle links vorne entfernt wurde. Jede Quelle ist mit einem eigenen Schwingquarz ausgestattet.

b) Funktionsprinzip eines Elektronenstrahlverdampfers. Aus einer Elektronenquelle werden Elektronen (e^-) emittiert und über magnetische und elektrische Felder auf ein im Verdampfer-tiegel befindliches Material gelenkt. Das Material wird lokal erwärmt und verdampft.

verhindern, muss für eine gute Kühlung gesorgt werden. Deshalb sind die meisten Elemente in Kupfer ausgeführt.

Der Radius der Elektronenbahn wird durch die Beschleunigungsspannung von einigen kV vorgegeben. Eine Feinjustage lässt sich durch variable elektrische Felder bewerkstelligen. Diese können auch zeitlich verändert werden, sodass der Elektronenstrahl das Material nicht nur punktuell erhitzt. Das Bewegen des Elektronenstrahls ist insbesondere für Dielektrika wichtig, da diese schlechte Wärmeleitfähigkeiten aufweisen. Deshalb wurde während des Aufdampfens der Elektronenstrahl in einer Ellipsenform über die Materialoberfläche geführt. Die Beschleunigungsspannung lag bei 7-8 kV, da sich bei höheren Spannungen die dielektrischen Materialien elektrisch aufladen können und es zu einem explosionsartigen Auswurf größerer Materialfragmente aus dem Aufdampftiegel kommen kann.

Um die Substrate aus Acryllack vor thermischen Schäden zu schützen, wurde auf eine Substrateheizung verzichtet. Deshalb ist davon auszugehen, dass es sich aufgrund der geringen Oberflächenmobilität der Adatome um poröse Schichten handelt. Dies erklärt auch die im Vergleich zu Literaturwerten niedrigeren Brechungsindizes.

4.2.3 Aufschleudern

Viele organische Materialien können in Lösung gebracht werden (s. Abschnitt 3.1.4). Dies ermöglicht die (großflächige) Herstellung von Schichten durch einen einfachen Aufschleuderprozess (s. Bild 4.23). Dazu wird die Lösung auf das Substrat aufgebracht.

Das Substrat wird mithilfe einer Vakuumpumpe angesogen und anschließend gedreht. Die Lösung verteilt sich gleichmäßig über das Substrat und überflüssige Lösung wird herunterschleudert. Nach dem Verdunsten des Lösungsmittels erhält man eine dünne, feste Schicht. Über die Drehgeschwindigkeit (400 – 5000 Umdrehungen pro Minute) und die Lösungsmittelkonzentration ist die Schichtdicke in einem gewissen Rahmen zu beeinflussen.

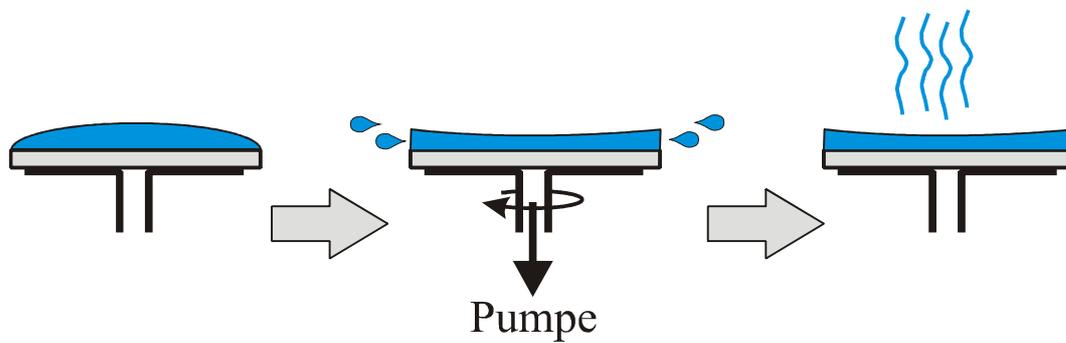


Bild 4.23: Der Aufschleuderprozess kann in drei Schritte eingeteilt werden: Lösung aufbringen, Schleudern und Lösungsmittel verdampfen lassen.

5 Messplätze zur Probencharakterisierung

Dieses Kapitel gibt einen Überblick über die verwendeten Messplätze. Als zentraler Aufbau wird zunächst der Lasercharakterisierungsmessplatz beschrieben, mit dessen Hilfe (zeitaufgelöste) Photolumineszenzspektren, Laserschwellen, Laserkennlinien, winkelaufgelöste Spektren und Fernfelder gemessen werden können. Anschließend wird die optische Bestimmung der Gitterperiode und der Beugungseffizienz besprochen.

5.1 Lasercharakterisierung

Der Lasercharakterisierungsmessplatz integriert diverse Messmethoden, welche auf demselben Pumplaser und zum größten Teil auf dasselbe Spektrometer zurückgreifen. Der Gesamtaufbau ist in Bild 5.1 skizziert. Als Pumplaser wurde ein diodengepumpter frequenzverdreifachter Nd:YVO₄-Laser der Firma *AOT-Laser* (AOT-YVO-20QSP) verwendet. Dieser emittiert Pulse von 500 ps Länge bei einer Wellenlänge von 355 nm und kann bei Wiederholraten von Einzelpulsen bis hin zu 20 kHz betrieben werden. Die Intensität kann stufenlos über ein variables, reflektierendes Neutralsdichtfilterrad eingestellt und über eine Fotodiode kontrolliert werden. Das Licht zur Fotodiode wird dabei über eine Glasplatte abgezweigt. Dahinter ist ein zweites Rad mit einzelnen ebenfalls reflektierenden Neutralsdichtfiltern angebracht. Diese Filter erlauben eine Grob-Abstufung der Pumpulsenergie.

Das Signal der GaAsP-Fotodiode wird über einen Transimpedanzverstärker aufbereitet und mithilfe eines Oszilloskops ausgelesen (s. Bild 5.2). Die Kalibrierung der Fotodiode erfolgt für jeden der Einzelfilter über die Spannungswerte der Signalpulse am Oszilloskop und ein Leistungsmessgerät (Coherent Fieldmaster GS mit dem Messkopf LM-2-UV), welches am Ort der Probe aufgestellt wird. Die Wiederholrate wird dabei auf eine,

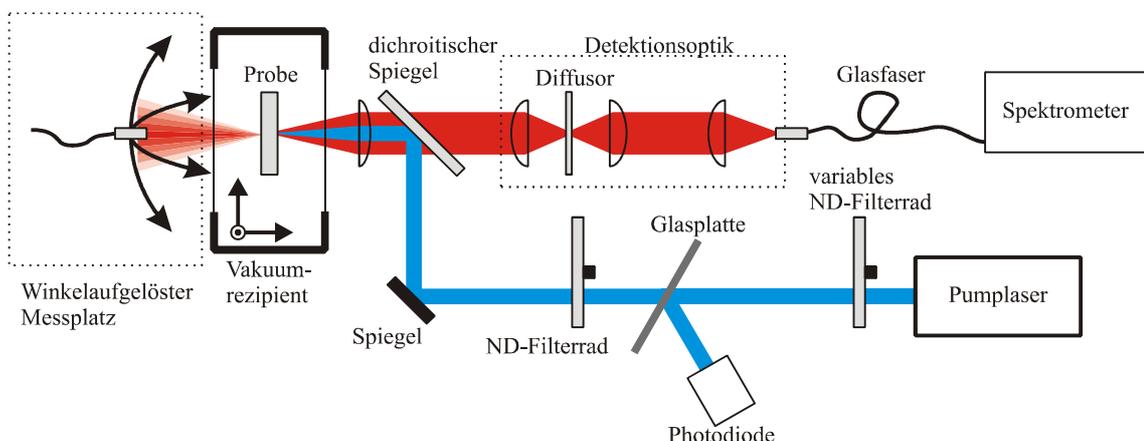


Bild 5.1: Schematische Darstellung des Lasercharakterisierungsmessplatzes. Die Abkürzung ND steht für Neutralsdichte. Der Strahlengang des Pumpasers ist in Blau und der emittierten Strahlung in Rot gezeichnet.

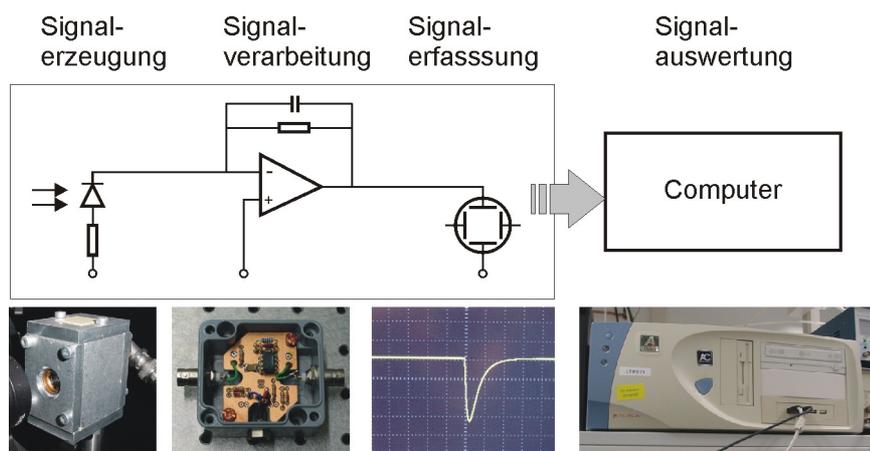


Bild 5.2: Leistungserfassung über eine Fotodiode. Der in der Diode erzeugte Strom I wird im Transimpedanzverstärker verstärkt und in eine Spannung $U = -R \cdot I$ umgewandelt. Die einzelnen Spannungspulse werden mithilfe eines Oszilloskopes erfasst und an einen Computer übertragen. Dieser besitzt die Kalibrierungsdaten und kann aus dem Spannungsausschlag auf eine Pulsleistung umrechnen.

laut Hersteller des Leistungsmessgerätes geeignete, Frequenz von 5 kHz gesetzt. Da die Pulshöhe zur Leistungsdetektion genutzt wird, ist auch eine Leistungskontrolle für andere Wiederholraten möglich, ohne eine erneute Kalibration vorzunehmen.

Durch die Position der Grobfilter hinter der Leistungskontrolle wird die Fotodiode immer im selben Leistungsbereich beleuchtet. Dies hat den Vorteil, dass der I/U-Wandler nur ein Mal dimensioniert werden muss. Ansonsten müsste die Verstärkung des I/U-Wandlers jeweils den Grobfiltern angepasst werden. Alternativ könnte auch ein ND-Filter die Leistung auf der Fotodiode anpassen. Dies würde aber ebenfalls mit einem Wechsel einhergehen. Durch die hier realisierte Lösung wird die Anpassung im Steuerungsprogramm gelöst, das heißt, bei der Leistungserfassung muss zusätzlich die jeweilige optische Dichte des Filters eingegeben werden.

Das Pumplicht wird, nach dem zweiten ND-Filterrad und einem Umlenkspiegel, über einen dichroitischen Spiegel auf eine dahinter positionierte Linse ($f = 75 \text{ mm}$) umgelenkt und anschließend auf die Probe fokussiert. Der dichroitische Spiegel ist unter einem Winkel von 45° bis 400 nm Wellenlängen reflektierend.

Die Probe befindet sich in einem Vakuumrezipienten und wird während der Messung unter einem Vakuum mit einem Druck $< 5 \times 10^{-3} \text{ Pa}$ gehalten. Dies vermindert Photooxidation, welche das Material in Umgebungsatmosphäre degradieren lassen kann.

Da der Vakuumrezipient in alle drei Raumrichtungen beweglich ist, lässt sich die Anregungsposition auf der Probe verändern. Zusätzlich kann die Probe aus dem Fokus gefahren werden, was eine Veränderung der Anregungsfläche erlaubt.

Nachdem die Probe optisch angeregt wurde, gibt es mehrere Möglichkeiten der Detektion. Die wichtigsten sind in den folgenden Unterabschnitten aufgeführt. Einige wenige sind direkt in den Auswertungsabschnitten aufgeführt.

Für die spektralen Messungen wurde das Licht in dem Monochromator *SpectraPro-300i* der Firma *ARC* spektral zerlegt und mit der ICCD-Kamera *PiMax:512* der Firma *Princeton Instruments* detektiert. Das Spektrometer verfügt über drei verschiedene Gitter (150, 600 und 1800 Linien/mm) und einen CCD-Chip mit 512-Pixeln.

5.1.1 Photolumineszenzmessungen

Bei Photolumineszenzmessungen wird die Probe angeregt und das emittierte Spektrum, also die Photolumineszenz (PL), detektiert. Dazu wird die emittierte Strahlung über dieselbe Linse eingesammelt, über die zuvor das Pumplicht fokussiert wurde. Der dichroitische Spiegel ist so ausgelegt, dass Licht oberhalb von 400 nm und eines Einfallswinkels von 45° transmittieren kann. Anschließend wird das Licht über die Detektionsoptik in eine Glasfaser fokussiert und in das Spektrometer eingekoppelt. Vor der Detektionsoptik befindet sich noch ein Farbfilter (GG400) der Firma *Schott*, welcher sicherstellt, dass kein Licht des Anregungslasers mitdetektiert wird. Dieser Filter ist in der Skizze nicht berücksichtigt.

Die Detektionsoptik selber bildet die PL in einer Zwischenabbildung auf eine Streuscheibe (Diffusor) ab, bevor die PL in die Glasfaser eingekoppelt wird. Dies minimiert eventuell auftretende winkelabhängige Effekte.

5.1.2 Ortsaufgelöste PL-Messungen

Bei den ortsaufgelösten Messungen wird die Probe systematisch verfahren, was einem Abrastern der Probe durch die Anregungsfläche entspricht. An jedem Anregungspunkt wird ein Spektrum detektiert. Um diese Daten darzustellen, wird (teilweise) das Spektrum integriert. Somit erhält man ein Intensitätsprofil des abgerasterten Bereiches. Bereiche, welche rot erscheinen, stellen Gebiete mit einem hohen Signal dar. Blau gezeichnete Gebiete stehen dagegen für eine geringe emittierte Intensität.

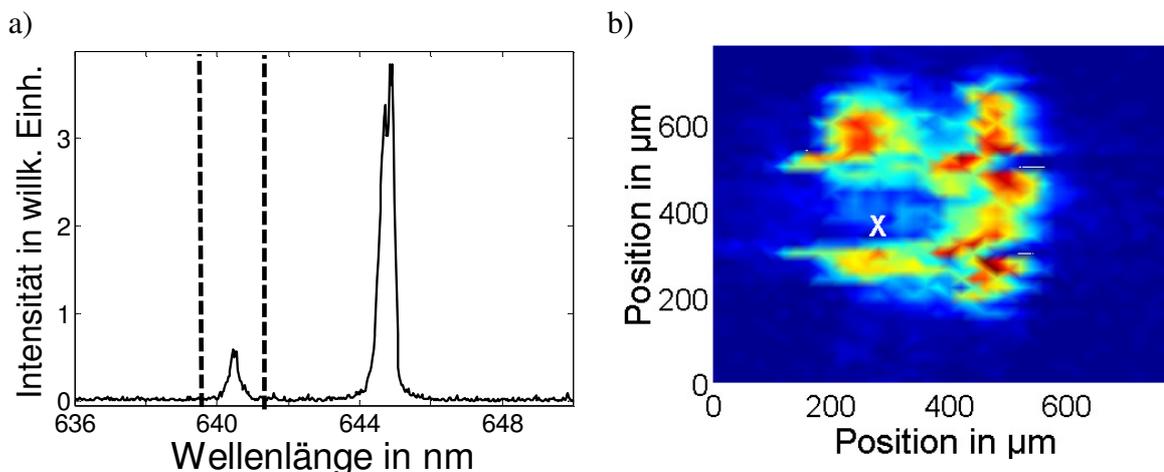


Bild 5.3: a) Spektrum am Ort ($x = 280 \mu\text{m}$; $y = 380 \mu\text{m}$) einer abgerasterten Probe. Für das Intensitätsprofil (b) wurde der Bereich zwischen den beiden gestrichelten Linien integriert. Die Stelle des Spektrums ist in (b) durch ein weißes X gekennzeichnet.

Eine solche Messung ist in Bild 5.3 zu sehen. Es zeigt neben dem Spektrum an einem einzelnen Anregungsort auch ein Intensitätsprofil des gesamten abgerasterten Gebietes. Dabei wurde das Spektrum zwischen den beiden gestrichelten Linien integriert. Die Stelle des dargestellten Spektrums ist im Intensitätsprofil mit einem weißen X markiert. Man erkennt, dass auch an dieser Stelle Lasertätigkeit detektiert werden kann, obwohl der blaue Bereich zunächst das Gegenteil suggeriert.

Auf Seite 97 wird die hier als Beispiel vorgestellte Messung genauer interpretiert. Dort sind auch Intensitätsprofile zu sehen, welche bei der vollständigen Integration der Spektren und in einem Bereich um 644,5 nm herum entstehen.

5.1.3 Laserswellenmessung

Für die Bestimmung der Laserswellen werden, wie in Abschnitt 5.1.1 beschrieben, PL-Messungen bei unterschiedlichen Anregungsenergien durchgeführt. Vor jeder Messreihe wird zudem ein Dunkelspektrum aufgenommen und von jedem PL-Spektrum abgezogen.

Für die Auswertung werden die Pumpenergien gegen die Intensitäten bei der entsprechenden Laserwellenlänge aufgetragen. Dies ist am Beispiel von Bild 5.4 zu sehen. Das Beispiel zeigt den für Laser typischen Knick in der Kennlinie. Oberhalb dieses Knicks wird eine Ausgleichsgerade durch die Messpunkte durchgelegt. Der Schnittpunkt der Ausgleichsgeraden mit der x -Achse ist als Laserschwelle definiert.

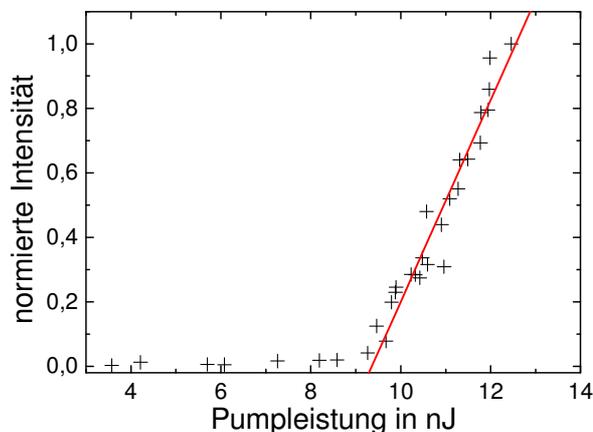


Bild 5.4: Für die Laserswellenbestimmung wird die Pumpulsenergie gegen die (normierte) detektierte Energie aufgetragen. Der Schnittpunkt der Ausgleichsgerade (rote Linie) mit der x -Achse ist als Laserschwelle definiert.

5.1.4 Laserkennlinienmessungen

Laserkennlinien werden bestimmt, indem die emittierte Leistung gegen die Eingangsleistung aufgetragen wird. Zu diesem Zweck wurde vor der Detektionsoptik ein Leistungsmessgerät positioniert. Die Steigung der Ausgleichsgeraden spiegelt den

differenziellen Wirkungsgrad wieder. Die Messungen sind nur dann sinnvoll, wenn die gesamte emittierte Leistung detektieren werden kann. Für fächerartig abstrahlende eindimensionale Laser wurden sie deswegen nicht vorgenommen. Aus den Laserkennlinien kann man wie oben die Laserschwelle bestimmen.

5.1.5 Winkelaufgelöste Messungen

Für winkelaufgelöste Messungen wird hinter dem Rezipienten eine Glasfaser mithilfe zweier Rotationseinheiten auf einer Kugelfläche um die Probe herumbewegt. Die Geometrie dazu ist schematisch in Bild 5.5 dargestellt. Der rote Pfeil entspricht der Emissionsrichtung in dessen Verlängerung die Glasfaser positioniert ist. Die Faser ist immer zum Anregungsort hin ausgerichtet. Die angefahrenen Koordinaten (φ, ϑ) entsprechen Kugelkoordinaten, wie sie aus der Geografie bekannt sind. Bei ϑ handelt es sich also um die Breiten- und bei φ um die Längengrade. Die Bezeichnung wird auch teilweise in den winkelaufgelösten Bildern verwendet, um darauf hinzuweisen, dass es sich um eine Kugel als Projektionsfläche handelt.

Die Glasfaser besitzt einen Durchmesser von 1300 μm und wird in einer Entfernung von 15 cm um die Probe herum gedreht. Vor der Glasfaser ist ein Farbfilter (GG400, Schott) positioniert, der die Anregungswellenlänge herausfiltert. Optional kann ein Polarisator eingesetzt werden. Die Filter sind auf einem optischen Mikrobanksystem befestigt und drehen sich mit der Faser mit.

Es sei an dieser Stelle darauf hingewiesen, dass mehrere Konventionen des Raumwinkels ϑ existieren. In diesem Fall wurde der Winkel zwischen der x - y -Ebene und der Emissionsrichtung gewählt. Der Polarwinkel φ ist als der Winkel zwischen x -Achse und der Projektion der Emissionsrichtung (im Bild als gestrichelte rote Linie gezeichnet)

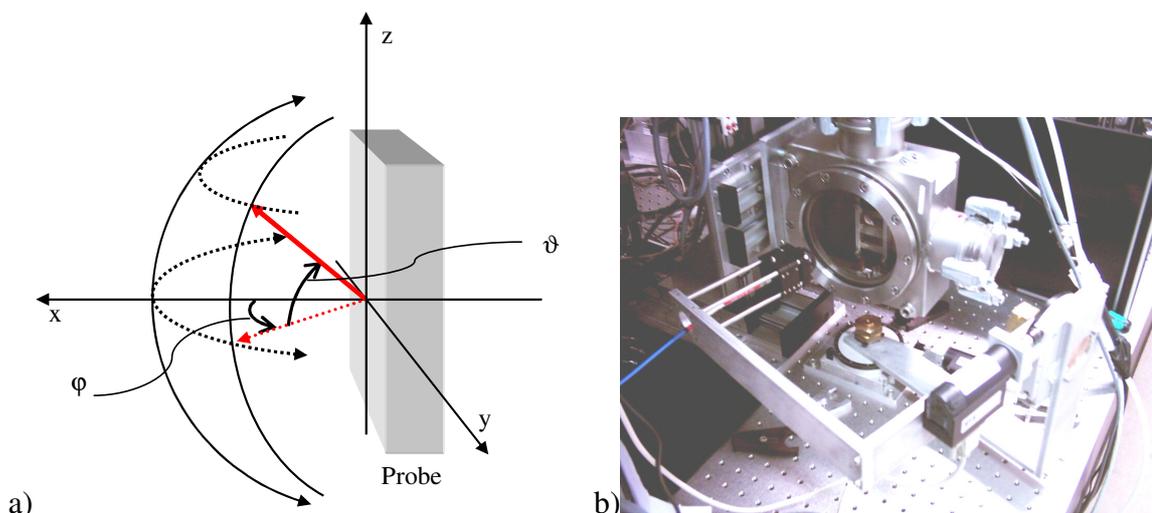


Bild 5.5: a) Schema der winkelaufgelösten Detektion. Die Probe kann entweder von hinten oder bei nicht transparenten Proben von vorne gepumpt werden. Der rote Pfeil gibt die Richtung der emittierten Strahlung bzw. in Verlängerung die Position der Glasfaser wieder. Die Angabe der Position erfolgt in den Koordinaten (φ, ϑ) .
b) Bild des realen Aufbaus.

definiert. Die Achsen sind so gewählt, dass die senkrechte Emission in die Richtung $(0^\circ, 0^\circ)$ verläuft.

Für nicht transparente Proben wird das Pumplicht hinter dem zweiten ND-Filter in eine Glasfaser eingekoppelt und anschließend über eine Optik auf die Probe fokussiert (nicht in Bild 5.1 abgebildet). Diese muss auf der Rückseite des Rezipienten so aufgebaut werden, dass die Detektionsfaser nicht behindert wird. Deshalb kann nur schräg angeregt werden. Eine kalibrierte Leistungsmessung steht dann nicht mehr zur Verfügung.

Da bei den Aufnahmen an jedem Messpunkt ein Spektrum detektiert wird, ist es nicht mehr möglich, alle Daten gleichzeitig darzustellen. Als Darstellungsmöglichkeit bietet sich, neben einem Spektrum an einem einzelnen Messort, eine Darstellung des Fernfeldes bzw. eines Intensitätsprofils an. Hier wird die detektierte Intensität am Messpunkt aufgetragen. Dazu kann entweder das gesamte Spektrum integriert werden oder man integriert nur einen kleinen Wellenlängenbereich um eine Zentralwellenlänge herum. Dieses Vorgehen ist analog zu den Darstellungen von orts aufgelösten Messungen in Abschnitt 5.1.2.

Eine weitere Darstellungsmöglichkeit ist, das Spektrum in Abhängigkeit vom Winkel wiederzugeben. Hier wird das Spektrum entlang der Breiten oder Längen dargestellt. Handelt es sich dabei um eine Hochsymmetrierichtung des Resonators, erhält man somit die photonische Bandstruktur. Für Bandstrukturrichtungen, welche um einen speziellen Winkel gedreht sind, z. B. 45° bei der Γ -M Richtung in einem quadratischen Gitter, kann die Messmatrix entsprechend gedreht werden, womit die passenden Positionen angefahren werden.

Eine Beispielmessung an quadratischen Substraten, auf die in Abschnitt 8.1.4 näher eingegangen wird, ist in Bild 5.6 a)-c) zu sehen. Die Messung des Spektrums am Punkt $(0^\circ, 0^\circ)$ ist in Teil a) abgebildet. Die gestrichelte Linie gibt über ihre Breite den Bereich an, über den für das Intensitätsprofil integriert wurde. Das Intensitätsprofil ist in Teil b) dargestellt. Die gestrichelte Linie spiegelt ihrerseits die x -Achse für das winkelabhängige Spektrum in Teil c) wider. Es handelt sich um die Γ -X-Richtung des quadratischen Gitters.

Das winkelabhängige Spektrum wird in dieser Arbeit auch gleichbedeutend mit der photonischen Bandstruktur $\omega(k)$ diskutiert. Die Bandstruktur gibt die erlaubten Zustände in einer bestimmten Kristallrichtung an. Regt man im vorliegenden Fall das aktive Medium zu Emission an, kann es entsprechend der Bandstruktur nur in die erlaubten optischen Zustände emittieren. Wird dieses Licht mit dem zugehörigen Wellenvektor k_0 aus der Ebene heraus gebeugt, ist unter einem Winkel α ein Intensitätsmaximum zu beobachten. Aus der Wellenlänge λ_0 kann nun der Wellenvektor k_0 bestimmt werden. Der Winkel wiederum gibt Aufschluss über den parallel zum Wellenleiter verlaufenden Wellenvektor $k_{||}$. Der Zusammenhang zwischen beiden

Darstellungen wird anhand von Bild 5.6 d) verdeutlicht. Für die Umrechnung benötigt man also die beiden Formeln:

$$\sin \alpha = \frac{k_{\parallel}}{k} \quad \text{und} \quad k = \frac{2 \cdot \pi}{\lambda_0} \cdot n_{\text{eff}} \quad (5.18)$$

Bei den Formeln ist noch nicht berücksichtigt, dass aufgrund der Brechung in Luft die Winkel mithilfe des Snellius'schen Brechungsgesetz korrigiert werden müssen.

Diese Herangehensweise beruht darauf, dass der Wellenleiter zum Leuchten gebracht wird. Daher kann nicht die gesamte Bandstruktur beobachtet werden. Zudem können nur die Bandstrukturen von Lasern gemessen werden, welche auch auskoppeln.

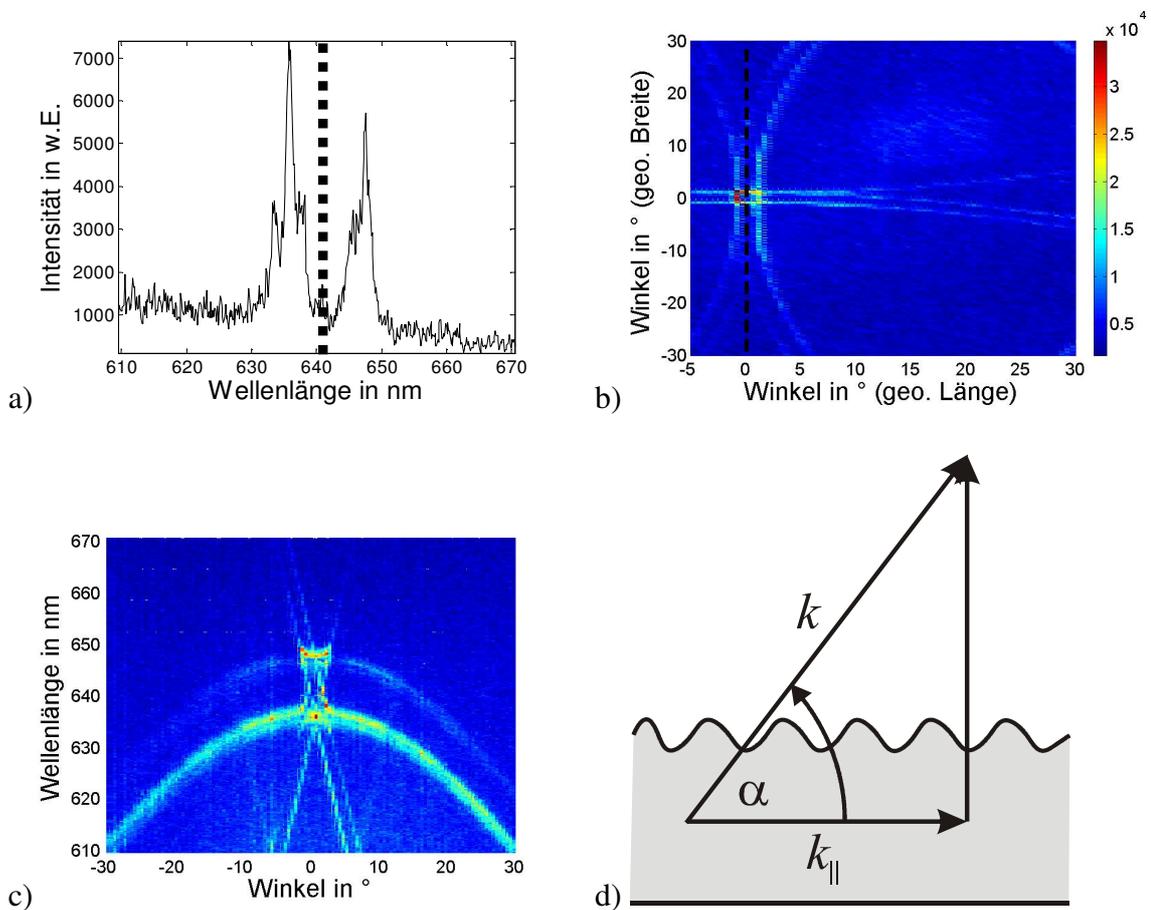


Bild 5.6: a) Spektrum an einem Ort (0° , 0°). Die Breite der gestrichelten Linie gibt den Bereich an, welcher für das Intensitätsprofil (b) integriert wurde.

c) Photonische Bandstruktur entlang der gestrichelten Linie aus (b).

d) Schema der Auskopplung aus einem periodischen Medium mit den entsprechenden Größen.

5.2 Optische Gittercharakterisierung

Die Gitterperiode Λ kann optisch mithilfe der sogenannten Littrow-Konfiguration bestimmt werden. Dazu wird, wie in Bild 5.7 a) zu sehen, die Probe so gedreht, dass der Laserstrahl in sich zurückreflektiert. Aus dem Drehwinkel α und der Laserwellenlänge λ kann man anschließend die Gitterperiode berechnen.

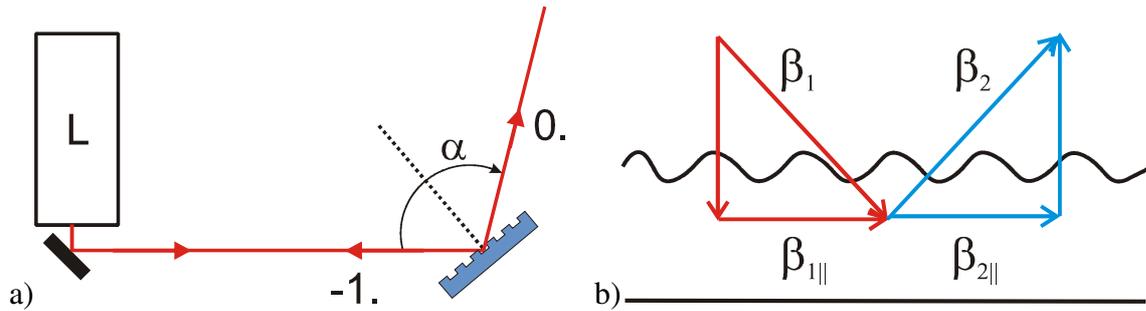


Bild 5.7: a) Gittercharakterisierungsmessplatz in Littrow-Geometrie. Das Gitter wird so gedreht, dass der einfallende Strahl des UntersuchungsLasers (L) in sich zurückgebeugt wird. b) Allgemeines Schema einer Gitterbeugung. Die einlaufende Welle ist in Rot und die gebeugte Welle in Blau dargestellt. Das Gitter selbst hat nur Einfluss auf die in der Wellenleiterebene verlaufenden Anteile der Wellen.

Die Bestimmungsgleichung lässt sich mittels der Formel (3.5) herleiten. Hierzu betrachtet man den allgemeinen Fall der Beugung am Gitter, wie er in Bild 5.7 b) skizziert ist. Aus der Energieerhaltung $\beta_1 = \beta_2 \equiv \beta = 2\pi/\lambda$ und der Tatsache, dass $-\theta_1 = \theta_2 \equiv \theta$ gilt, lässt sich anschließend folgende Gleichung ableiten:

$$\begin{aligned}
 \beta_{1||} - \beta_{2||} &= l \frac{2\pi}{\Lambda} \\
 \Leftrightarrow \beta_1 \cdot \cos \theta_1 - \beta_2 \cdot \cos \theta_2 &= l \frac{2\pi}{\Lambda} \\
 \Leftrightarrow \frac{2\pi}{\lambda} \cdot \cos \theta - \frac{2\pi}{\lambda} \cdot \cos(-\theta) &= l \frac{2\pi}{\Lambda} \\
 \Leftrightarrow \Lambda &= \frac{l \cdot \lambda}{2 \cdot \cos \theta} = \frac{l \cdot \lambda}{2 \cdot \sin \alpha}
 \end{aligned} \tag{5.19}$$

Üblicherweise wird die Gitterordnung $l = 1$ genutzt, da größere Drehwinkel als bei höheren Ordnungen nötig sind und so die Messgenauigkeit steigt. Mit dieser Methode lassen sich minimal Gitterperioden bis $\lambda/2$ bestimmen.

Die Gittereffizienz kann ähnlich wie die Periode bestimmt werden. Hierzu wird die Probe solange gedreht, bis die Gitterbeugung in 1. Ordnung maximal wird und sich das Gitter im sogenannten Bragg-Winkel θ_0 befindet. Das Verhältnis zwischen gebeugter Leistung und transmittierter Leistung ist dann die Gittereffizienz η . Sie steht für flache Gitter mit deren Tiefe d im folgenden Verhältnis [40]:

$$d \cong \sqrt{\eta} \frac{\lambda \cdot \cos \theta_0}{\pi \cdot \Delta n} \quad (5.20)$$

Bei λ handelt es sich um die Wellenlänge des einstrahlenden Lasers und bei Δn um den Brechungsindexunterschied zwischen Luft und Gittermaterial. Da diese Formel abhängig von der Gitterform ist, wurde in der Auswertung darauf verzichtet, die Tiefe damit zu bestimmen. Der parabolische Zusammenhang zwischen Tiefe und Effizienz besteht dagegen für eine Reihe von Gitterformen, weswegen davon auszugehen ist, dass sich bei zunehmender Tiefe die Effizienz vergrößert.

Für flache Gitter liegt es zudem nahe, dass mit steigender Gittertiefe auch die Effizienz ansteigt, da nur eine ausgeprägte Struktur in der Lage ist, Energie auf eine gebeugte Mode zu koppeln. Für tiefere Gitter ($d > \Lambda$) kann es dagegen zu oszillatorischen Effekten in der Effizienz kommen.

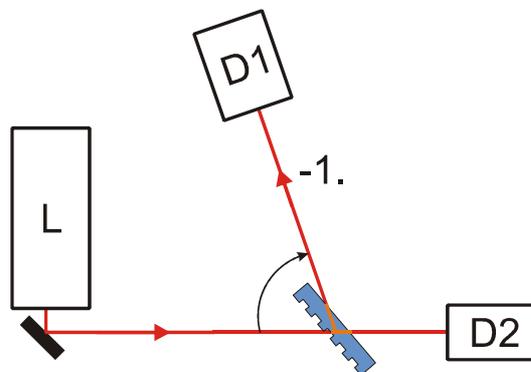


Bild 5.8: Bestimmung der Gittereffizienz. Das Gitter wird so gedreht, dass maximale Beugung im Detektor (D1) detektiert wird. Bei transparenten Proben wird hinter dem Gitter ein Referenzsignal mithilfe eines Detektors (D2) aufgenommen.

6 Durchstimmbare Laser

Ein großer Vorteil organischer Laser ist die Möglichkeit, das gesamte sichtbare Spektrum mit nur wenigen Materialsystemen abzudecken. Für die gezielte Nutzung einer Wellenlänge existieren diverse Ansätze, welche in Bild 6.1 zusammengefasst sind. Dieses Kapitel beschäftigt sich mit den verschiedenen Konzepten für Photonische-Kristall-Laser. Es demonstriert die Durchstimmbarkeit am Beispiel der Variation der Gitterperiode Λ sowie am Beispiel von dotierten Spiro-6-phenyl-Schichten. Auf den Einsatz von homogenen Hochindex-Schichten wird in Abschnitt 6.4 näher eingegangen.

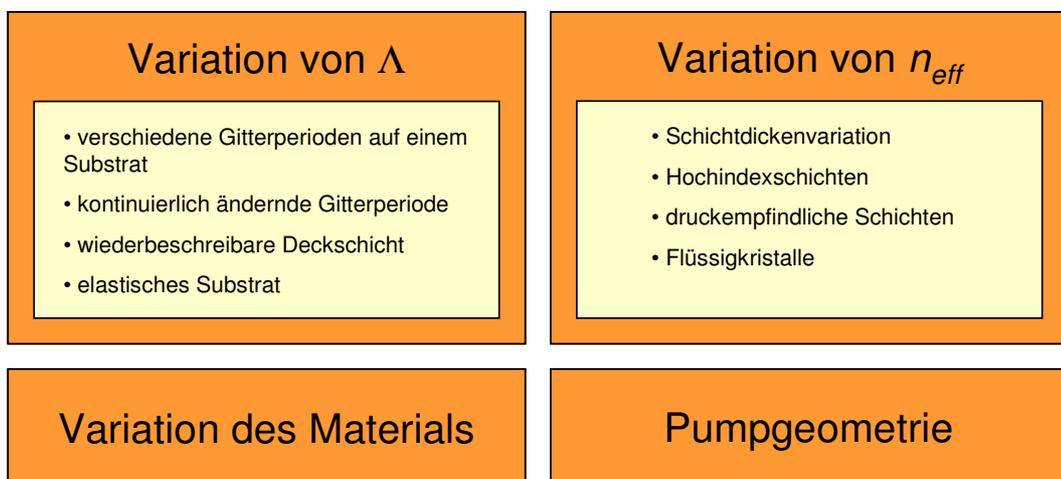


Bild 6.1: Überblick über die verschiedenen Ansätze zum Durchstimmen eines Photonischen-Kristall-Lasers.

Λ : Gitterperiode; n_{eff} : effektiver Brechungsindex.

6.1 Konzepte für durchstimmbare organische Laser

Das Materialsystem gibt anhand seines Gewinnspektrums den groben Rahmen für den Durchstimmbereich vor. Je nach Material kann dies bis zu 130 nm umfassen. Um schließlich die gewünschte Laserwellenlänge zu selektieren, existieren verschiedene Konzepte. Viele lassen sich an der schon eingeführten Bragg-Gleichung erläutern:

$$\lambda_{laser} = \frac{\Lambda \cdot 2 \cdot n_{eff}}{m} \quad (6.21)$$

Die Laserwellenlänge λ_{laser} lässt sich danach über den effektiven Brechungsindex n_{eff} oder die Gitterperiode Λ verändern.

Die Variation der Gitterperiode kann mit unterschiedlichen Methoden erreicht werden. So ist es möglich, auf einem Substrat verschiedene Bereiche mit unterschiedlichen Gitterperioden zu verwenden (s. nächsten Abschnitt). Je nach Wahl des Anregungsortes

erhält man eine andere Laserwellenlänge. Für ein kontinuierliches Durchstimmen bieten sich dann Substrate mit kontinuierlich verändernder Gitterperiode an [29].

Bei elastischen Substraten kann die Gitterperiode durch mechanisches Ziehen (reversibel) verändert werden ([41], [42]). Dies erlaubt den Einsatz einer festen Anregungsfläche.

Bei wiederbeschreibbaren Oberflächengittern muss das Gitter zunächst gelöscht werden und kann dann erneut beschrieben werden ([43], [44]). Für eine zeitnahe Durchstimmbarkeit ist dieses Verfahren daher nicht zu bevorzugen.

Der effektive Brechungsindex n_{eff} lässt sich auf mehrere Arten verändern. Eine Methode ist die Variation der Schichtdicke des aktiven Mediums. Diese Veränderung führt zu einem größeren optischen Füllfaktor Γ für dickere Schichten und infolgedessen zu einem größeren n_{eff} . Bei aufdampfbaren Materialien wird dazu, während der Herstellung, eine Blende schrittweise vor das Substrat gezogen. Dadurch erhält man, wie bei einem Substrat mit unterschiedlichen Gitterperioden, an verschiedenen Orten unterschiedliche Laserwellenlängen. Für aufgedampfte Alq₃:DCM-Schichten wurde dies erfolgreich demonstriert [22]. Die Variation der Schichtdicke von 120 nm bis hin zu 435 nm ergab eine Verschiebung der Laserwellenlänge von 604 nm hin zu 648 nm. Für die Materialklasse der Polymere bzw. der nicht aufdampfbaren Materialien ist eine Schichtdickenvariation auf demselben Substrat nicht einfach zu realisieren. Eine Alternative bieten homogene Hochindex-Schichten auf dem Gitter. Diese Methode wurde im Rahmen dieser Doktorarbeit zum ersten Mal realisiert. Eine nähere Erläuterung ist in Abschnitt 6.4 zu finden.

Ein alternatives Konzept zur Variation des Brechungsindex n_{eff} bieten druckempfindliche Schichten. So konnte die Durchstimmbarkeit von Lasern durch das Zusammenpressen der Bauelemente demonstriert werden [42]. Hierbei verändert sich der Brechungsindex der druckempfindlichen Schicht und beeinflusst so n_{eff} .

Mithilfe einer angelegten Spannung könnte sich bei Schichten mit Flüssigkristallen die Höhe der Schicht und somit der Brechungsindex direkt verändern. Dies konnte für Photonische-Kristall-Resonatoren allerdings noch nicht realisiert werden.

Ein anderer Weg, die Gitterperiode zu verändern, ist bei gewinngekoppelten Lasern (s. Abschnitt 3.3.1) gegeben. Hier kann die Periode des Pumpmusters durch die Änderung der Pumpgeometrie variiert werden [45].

Eine weitere mögliche Methode ist es, das Material selber zu verändern. Dies könnte durch Vermischen zweier Laserfarbstoffe und Änderung des Mischungsverhältnisses geschehen. Eine Realisierung wäre das Coverdampfen zweier Materialien.

Alle Konzepte besitzen Vor- und Nachteile. Bei großflächigen Bauteilen wird es zum Beispiel schwierig, auf das Elektronenstrahlschreiben zurückzugreifen. Auch treten bei

der Laserinterferenzlithografie neue Probleme auf, wenn es darum geht, mehrere Felder mit unterschiedlichen Gitterperioden auf einem Substrat zu belichten [46].

6.2 Variation der Gitterperiode

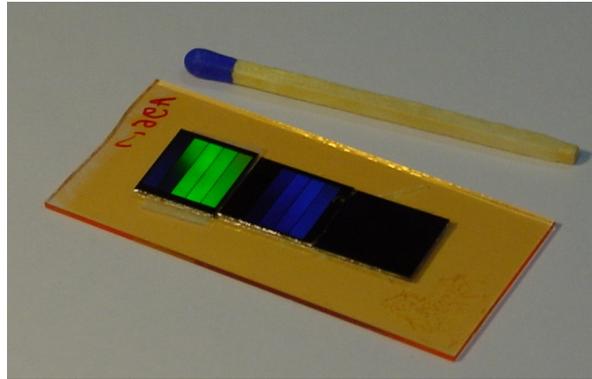


Bild 6.2: Die verwendeten Substrate wurden auf einem Objektträger befestigt und bedampft. Gitterbeugung ist an einigen Resonatorfeldern erkennbar. Zum Größenvergleich liegt neben der Probe ein Streichholz.

Für die Realisierung eines großen Durchstimmbereiches wurden Substrate mit Feldern unterschiedlicher Gitterperiode genutzt (s. Bild 6.2). Die Periode der linearen Gitter wurde so gewählt, dass es sich um oberflächenemittierende 2. Ordnung-Laser handelte. Als Materialsystem wurde eine 350 nm dicke Alq_3 :DCM-Schicht verwendet. Durch das mechanische Verfahren der Probe konnten die unterschiedlichen Felder gepumpt und somit die Laserwellenlänge verändert werden.

In Bild 6.4 a) sind die Emissionsspektren der einzelnen Felder mit den zugehörigen Laserschwelen zu sehen. Die Laserwellenlänge reicht von 605 nm bis hin zu 727 nm und deckt somit einen Spektralbereich von 122 nm ab. Bei 645 nm bildet sich ein Minimum mit einer Laserschwelle von $1,46 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ aus.

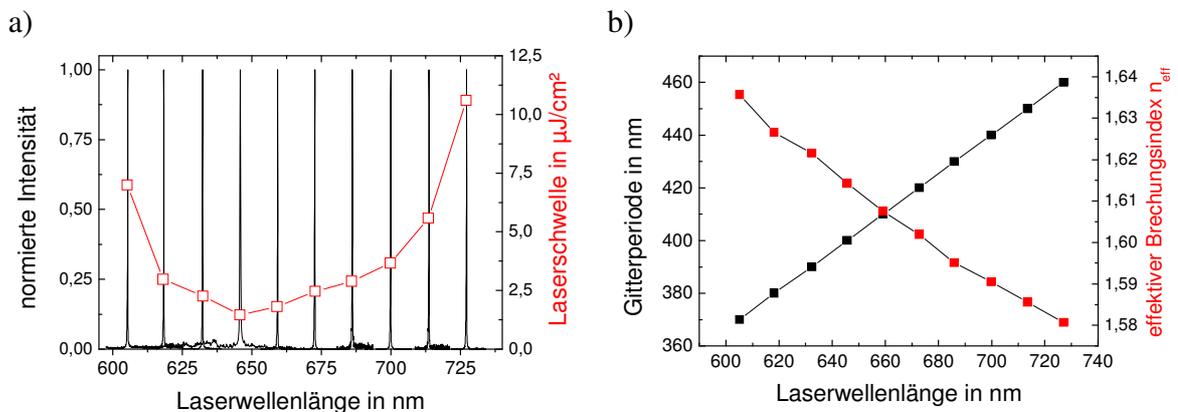


Bild 6.3: a) Laserspektren linearer Gitter mit unterschiedlichen Perioden mit den zugehörigen Laserschwelen (rot).
b) Zusammenhang zwischen Laserwellenlänge und Gitterperiode bzw. effektivem Brechungsindex n_{eff} (rot).

Bei Betrachtung des Zusammenhangs zwischen Laserwellenlängen und Gitterperiode in Bild 6.3 b), ist ein linearer Zusammenhang erkennbar. Aus der Steigung ermittelt man, dass sich die Emissionswellenlänge um 1,36 nm verschiebt, wenn die Gitterperiode um 1 nm verändert wird. Im selben Grafen ist zudem die Abhängigkeit des effektiven Brechungsindex von der Laserwellenlänge aufgetragen (rote Symbole). Dieser wurde mit der Formel (6.21) berechnet und fällt von 1,64 auf 1,58 ab. Dies hängt damit zusammen, dass der Brechungsindex des Materialsystems nicht über das gesamte Spektrum konstant ist, sondern ins langwellige abfällt. Dieses Verhalten ist für viele Materialien zu beobachten, da der Brechungsindex zur Absorptionswellenlänge hin ansteigt.

6.3 Durchstimmbare Laser auf Basis von Spiro-6-phenyl

Mit Blick auf kompakte und günstige durchstimmbare Lichtquellen auf Basis organischer Festkörper wäre es ideal, nur eine Pumpquelle zu nutzen. Das „Umschalten“ auf eine andere Farbe könnte dann durch das mechanische Wechseln oder Durchfahren der Lasersubstrate realisiert werden. Für ein solches System bietet sich das in Kapitel 3.1.6 vorgestellte Spiro-6-phenyl an. Sein Absorptionsspektrum liegt im UV-Bereich, sein Emissionsmaximum befindet sich mit 420 nm im blauen Spektrum. Neben der Eigenschaft als aktives Lasermaterial eingesetzt zu werden, bietet es sich als Wirtsmaterial in einem Förster-Transfer-System (s. Abschnitt 3.1.2) an.

Nach der Herstellungs- und Probenübersicht wird die Durchstimbarkeit der Laserwellenlänge im gesamten sichtbaren Spektrum vorgestellt. Abschnitt 6.3.3 behandelt Fluoreszenzlebensdauermessungen, welche den Förster-Transfer zwischen Spiro-6-phenyl und Dotant untersuchen.

6.3.1 Herstellungs- und Probenübersicht

Zur Abdeckung des gesamten sichtbaren Bereiches wurden neben reinen Spiro-6-phenyl-Schichten auch mit den Laserfarbstoffen DPVAB, Coumarin 153 und DCM dotierte Schichten aufgeschleudert. Die dafür in Chlorform angesetzten Lösungen (25 mg/ml), standen vorher solange im Rüttler, bis sich alle Materialien vollständig aufgelöst hatten. Die Substrate wurden vollständig mit Lösung bedeckt ($\sim 80 \mu\text{l}/\text{cm}^2$) und rotierten 20 Sekunden lang bei 1000 Umdrehungen pro Minute.

Die Wahl der Chemikalien gibt die Grobabstimmung der Laserwellenlänge vor. Um auch eine spektrale Feinabstimmung zu erreichen, standen Substrate mit unterschiedlichen Gitterperioden Λ zur Verfügung.

Bei den Substraten handelt es sich um elektronenstrahlolithografisch hergestellte lineare Gitter (s. Seite 40). Es befinden sich 4-5 Resonatorfelder auf jeder Probe, welche in der Periode um jeweils 10 nm variieren. Die Substrate und der Schichtaufbau der Laser sind

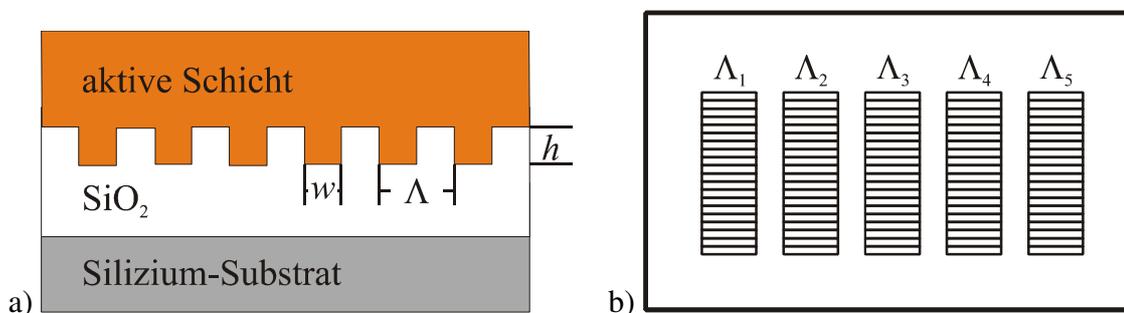


Bild 6.4: a) Schichtaufbau der eindimensionalen DFB-Laser. Die oxidierte Schicht des Silizium-Substrates beträgt 600 nm. Die Gitterperiode Λ variiert von Feld zu Feld. b) Schema eines Lasersubstrates mit fünf Resonatorfeldern mit unterschiedlicher Gitterperiode Λ_i . Die Richtung der Gitter ist jeweils angedeutet.

in Bild 6.4 schematisch skizziert. Für die Lebensdauermessungen wurden zusätzlich noch Objektträger beschichtet.

6.3.2 Lasereigenschaften dotierter Spiro-6-phenyl-Laser

Die hergestellten Lasersubstrate wurden hinsichtlich ihrer Laserschwelle und ihrer Emissionswellenlänge untersucht. In Tabelle 6.2 sind alle aufgenommenen und ausgewerteten Daten der untersuchten Laser zusammengefasst. Bild 6.5 zeigt zudem die Spektren einiger ausgesuchter Materialsysteme. Man erkennt, dass sich durch die verwendeten Dotiermaterialien die Laserwellenlänge von 420 nm bis hin zu 640 nm verschieben lässt. Dabei wurden alle Proben bei 355 nm Wellenlänge gepumpt. Spiro-6-phenyl eignet sich demnach als Laser- und Wirtsmaterial für einen kompakten durchstimmbaren Laser.

Die Feinabstimmung der Emissionswellenlänge wurde über die Gitterperioden der Substrate realisiert. Die Änderung der Periode um 10 nm führte zu Wellenlängenverschiebungen von teilweise bis zu 15 nm. Diese Lücken ließen sich durch die Herstellung kleinerer Abstände schließen.

Auffallend ist, dass die mit DCM dotierten Laser, gegenüber solchen aus Alq₃:DCM, tendenziell zum Blauen hin verschoben sind. Dies lässt sich durch die unterschiedlichen Wirtsmaterialien bzw. deren Polarität erklären [29]. Der Effekt tritt auch bei Farbstoffen in Lösung auf und wird dort als Solvatochromieeffekt bezeichnet.

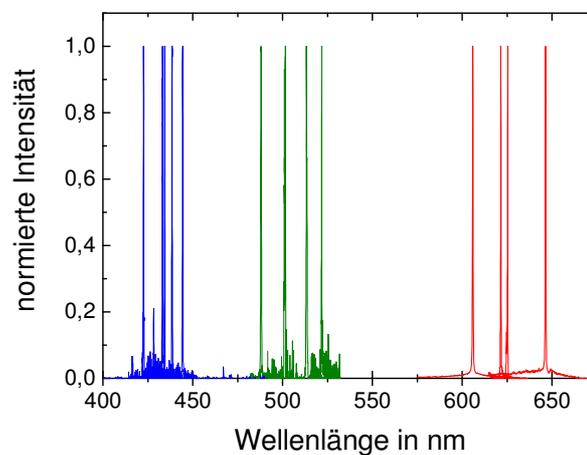


Bild 6.5: Übersicht über die Laserspektren von undotierten (blau) und mit DPVAB (grün) bzw. DCM (rot) dotierten Spiro-6-phenyl.

Tabelle 6.2: Daten der einzelnen Lasersubstrate auf Basis des Wirtsmaterials Spiro-6-phenyl. Es handelt sich um lineare Gitter. Die Anregungsfläche des Pumplasers betrug $4 \cdot 10^{-4} \text{ cm}^2$.

Dotiermaterial	Dotierkonzentration	Gitterperiode in nm	Laserschwelle in nJ	Wellenlänge in nm	n_{eff}
DCM	5 mol%	360	28	599,2	1,66
		370	24	614,7	1,66
		380	23	628,7	1,65
		390	23	621,5	1,59
		400	38	642,2	1,60
Coumarin 153	3 mol%	300	144	502,8	1,68
		310	133	512,7	1,65
		320	122	501,4	1,57
		320	122	522,2	1,63
DPVAB	4 mol%	290	43	488,0	1,68
		300	14	501,0	1,67
		310	11	513,2	1,66
		320	43	521,9	1,63
reines Spiro-6-phenyl		230	54	422,6	1,84
		240	57	433,1	1,80
		250	50	444,3	1,78
		250	49	428,2	1,71
		260	68	434,3	1,67
		270	28	438,4	1,62

Der effektive Brechungsindex n_{eff} liegt aufgrund des hohen Index von Spiro-6-phenyl (s. Abschnitt 3.1.7) etwas höher, als bei den in dieser Arbeit häufig verwendeten Lasern aus Alq_3 :DCM. Dies schlägt sich insbesondere bei reinem Spiro-6-phenyl nieder. Zudem sind in den Spektren häufig Doppelmoden erkennbar, welche spektral weiter entfernt liegen. So ist an reinen Spiro-6-phenyl-Schichten auf einem 250 nm-Gitter gleichzeitig Lasertätigkeit bei 428 nm und 444 nm zu beobachten (s. Tabelle 6.2). Dies kann durch das Anschwingen einer TE- und einer TM-Mode interpretiert werden. Es erklärt ebenso den Sprung zurück in das langwellige Spektrum bei den mit DCM dotierten Lasern.

6.3.3 Lebensdauermessungen an Spiro-6-phenyl-Schichten

Für ein tieferes Verständnis des Energieübertrags von Wirts- zum Gastmaterial, im konkreten Fall vom Spiro-6-phenyl zum Dotiermaterial, bietet sich die zeitaufgelöste Fluoreszenzspektroskopie an. Sie gibt durch das zeitliche Abfallen der Fluoreszenz nach einem Anregungspuls Aufschluss über die Verweildauer eines angeregten Elektrons in einem strahlenden Niveau. Da der Aufbau aus Abschnitt 5.1.1 eine maximale Auflösung von ungefähr 1,5 ns besitzt, wurden diese Messungen von Yousef Nazirizadeh im Hause durchgeführt. Der genaue Aufbau ist im Anhang 13.1 erläutert. Für die Untersuchungen wurden reine Wellenleiterschichten der Materialsysteme auf Glas hergestellt. Die Aufnahmen der Lebensdauern geschahen spektral aufgelöst bei 420 nm, 500 nm und 620 nm. Die zugehörige spektrale Breite lag bei circa 4 nm. Die

Werte stimmen mit den Wellenlängen überein, bei denen für die unterschiedlichen Materialsysteme Lasertätigkeit detektiert wurde. Die Abfallkurven einer reinen Spiro-6-phenyl Schicht und der dotierten Schichten sind in Bild 6.6 dargestellt. Die quantitativen Ergebnisse sind in Tabelle 6.2 zusammengefasst. Es ist zu beobachten, dass die Lebensdauer bei 420 nm für die dotierten Systeme (blaue Kurven) unterhalb der Messgenauigkeit von 45 ps fallen. Qualitativ bedeutet dies, dass die angeregten Zustände im Spiro-6-phenyl durch die Dotierung nicht mehr strahlend zerfallen, sondern durch den Förster-Transfer (s. Abschnitt 3.1.2) abgebaut werden. Dabei wird die Energie strahlungslos auf das Gastmaterial übertragen, was die starke Photolumineszenz der Emissionswellenlängen der Dotiermaterialien im Gegensatz zu einer vernachlässigbaren bei 420 nm erklärt. Die Lebensdauern der Laserniveaus liegen zwischen 900 ps bis 2 ns, was in Hinblick auf Pumpimpulsdauern um die 1 ns akzeptabel ist (s. Abschnitt 3.4.1).

Für DCM und Coumarin 153 liegen aus der Literatur unterschiedliche Lebensdauern

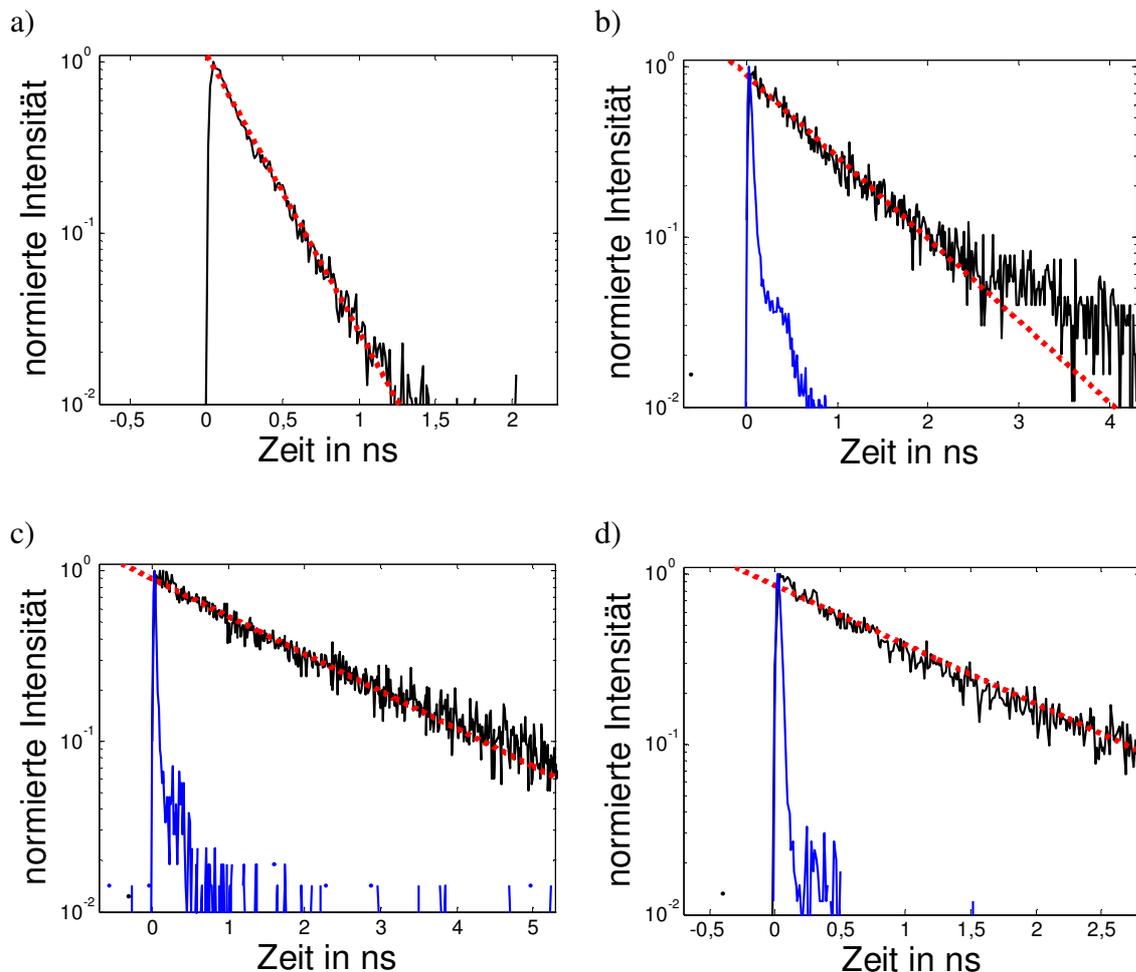


Bild 6.6: Abklingdynamik von Lasern basierend auf Spiro-6-phenyl für a) undotierte b) mit DPVAB c) mit Coumarin 153 und d) mit DCM dotiert. Die schwarzen Linien geben die Intensitäten bei den Wellenlängen 420 nm (a), 520 nm (b+c) und 620 nm (d) wieder. Die dazugehörigen Anpassungsgeraden sind rot gestrichelt gezeichnet. Die blauen Kurven stellen das Abklingverhalten bei 420 nm am gleichen System dar.

vor. Diese variieren in Abhängigkeit vom verwendeten Lösungsmittel. So werden für DCM Lebensdauern zwischen 0,74 ns und 2,18 ns berichtet [47]. In Methanol liegt die Lebensdauer bei 1,31 ns. Für in Methanol gelöstes Coumarin 153 wurde eine Lebensdauer von circa 4 ns bestimmt [48]. Die Lebensdauern liegen also in derselben Größenordnung wie sie in einer Festkörperschicht vorliegen. Des Weiteren bleibt auch die Tendenz erhalten, dass DCM im Vergleich zum Coumarin 153 eine kürzere Lebensdauer besitzt. Für DPVAB lagen dagegen keine Literaturwerte vor. Es zeigte zwar die schnellste Abklingdynamik, lag aber noch oberhalb der Pumpimpulslänge.

Tabelle 6.3: Ergebnisse der Fluoreszenzlebensdaueremessungen. Die Schichten wurden auf einen unstrukturierten Objektträger aufgebracht.

Wirtsmaterial	Gastmaterial	Dotierung	Lebensdauern bei		
			420 nm	500 nm	620 nm
Spiro-6-phenyl	—	—	0,27 ns		
Spiro-6-phenyl	DPVAB	4 mol%	< 45 ps	0,9 ns	
Spiro-6-phenyl	Coumarin 153	3 mol%	< 45 ps	1,98 ns	
Spiro-6-phenyl	DCM	5 mol%	< 45 ps		1,25 ns

6.4 Homogene Hochindex-Schichten

Das Durchstimmen der Laserwellenlänge auf einem einzigen Lasersubstrat wird standardgemäß durch die Verwendung unterschiedlicher Gitterperioden realisiert (s. Abschnitt 6.1). Durch optisches Pumpen auf den unterschiedlichen Gittern kann so die gewünschte Laserwellenlänge eingestellt werden. Für die Herstellung solcher Substrate bietet sich besonders die Elektronenstrahlithografie an, da interferenzlithografische Methoden große experimentelle Schwierigkeiten aufweisen, wenn es um die Belichtung verschiedener Gitterperioden auf einem Substrat geht [46]. Umgekehrt verhält es sich, wenn es um die Herstellung großflächiger Substrate geht. Hier stößt die Elektronenstrahlithografie an ihre Grenzen. Für die Kombination von großflächigen und durchstimmbaren Lasersubstraten werden deshalb andere Konzepte benötigt. Als Basis hierfür können großflächige, interferenzlithografisch hergestellte Substrate mit einer festen Periode dienen.

Anstatt die Gitterperiode zu variieren, kann die Laserwellenlänge über die Veränderung des effektiven Brechungsindex verschoben werden (s. Abschnitt 6.1). Für aufgedampfte Schichten lässt sich dies über die Schichtdicke erreichen. Dazu wird während des Aufdampfens ein Abschattungsblech vor die Proben geschoben. Für aufgeschleuderte Schichten ist eine gezielte Schichtdickenvariation auf einem Lasersubstrat nicht möglich. Aber gerade diese Herstellungsweise bietet sich für potenziell günstige Laser an. Das in dieser Arbeit untersuchte Konzept schließt diese Lücke und bietet die Möglichkeit, auch für aufgeschleuderte Schichten großflächige, durchstimmbare Laser zu realisieren.

Das Konzept beruht auf dem Einbringen einer dünnen Zwischenschicht zwischen Substrat und aktivem Lasermaterial (s. Bild 6.7). Über ihre Schichtdicke kann der effektive Brechungsindex n_{eff} und somit die Laserwellenlänge verändert werden. Damit diese Änderung möglichst groß ausfällt, wird ein Material mit einem Brechungsindex größer als der des Lasermaterials verwendet. Diese Schicht wird im Folgenden als Hochindex-Schicht bezeichnet, da sie den höchsten Brechungsindex im Bauteil aufweist.

Ziel der Untersuchungen war es, das Verschieben der Laserwellenlänge über die Dicke der Hochindex-Schicht und den Einfluss der Schicht auf die Lasereigenschaften zu analysieren. So lag die Vermutung nahe, dass die geführte Lasermode stärker in der Hochindex-Schicht läuft, wenn deren Dicke steigt. Dies würde zu einem sinkenden optischen Füllfaktor Γ und gegebenenfalls zu höheren Laserschwelen führen.

Im nächsten Abschnitt wird auf die Ergebnisse aus der Literatur eingegangen, in der strukturierte Hochindex-Schichten als Resonator eingesetzt wurden. Danach werden die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Experimente vorgestellt. Nach dem Abschnitt 6.4.3 über die experimentellen Arbeiten ist ein Abschnitt mit Wellenleiter-

simulationen eingeschoben. Die hier gewonnenen Ergebnisse werden in der anschließenden Diskussion erneut aufgenommen.

6.4.1 Stand der Technik

Hochindexmaterialien wurden bereits von Harbers et al. ([49], [50], [51]) eingesetzt, um größere Rückkopplungskoeffizienten zu erreichen. Ihre Resonatoren bestanden aus dünnen Titandioxid-Schichten ($n = 2,5$), in welche ein quadratisches Gitter nass-chemisch geätzt wurde. Die experimentellen und theoretischen Ergebnisse zeigten eine deutlich stärkere Rückkopplung im Vergleich zu in Quarz geätzten Resonatoren. Gleichzeitig wurde durch den höheren Brechungsindex des Resonators die Mode aus dem aktiven Material in das Titandioxid gezogen. Dies hatte den Nachteil, dass der optische Füllfaktor sank. In der zitierten Literatur überwiegt aufgrund der kleinen Resonatorfelder allerdings der Vorteil einer erhöhten Rückkopplung, solange die Titandioxidschicht gering ($\sim 10\%$ der Gitterperiode) gehalten wird. So weisen die Resonatoren mit Titandioxid niedrigere Laserschwellen auf als Vergleichsstrukturen aus Siliziumdioxid ($n = 1,46$).

Zudem wurde gezeigt, dass nicht nur der Brechungsindexunterschied entscheidend ist, sondern auch, ob dieser durch ein Hochindex- oder Niedrigindexsubstrat zustande kommt [50]. So steigt die Rückkopplung bei Hochindexsubstraten wesentlich schneller an. Dies ist auf den oben erwähnten größeren Überlapp der Mode mit dem Resonatorgebiet zurückzuführen.

6.4.2 Experimente

Als Ausgangssubstrate standen lineare Gitter mit einer Periode von 400 nm, einer Gittertiefe von circa 90-100 nm und einem Tastverhältnis (Steglänge/Periodizität) von $\sim 0,6$ zur Verfügung. Die Substrate wurden am *Fraunhofer Institut für Solare Energiesysteme* durch Abformung eines Nickelstempels in Acryllack hergestellt. Der Stempel

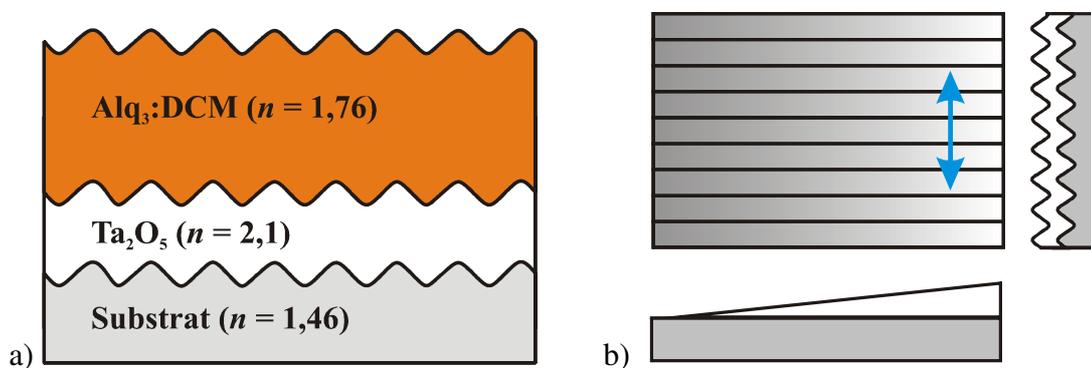


Bild 6.7: a) Schematische Darstellung des Schichtaufbaus der Lasersubstrate mit Hochindex-Schicht. In den Klammern stehen die jeweiligen Brechungsindizes der Schichten. b) Verschiedene schematische Ansichten des graduell bedampften Laserresonators. Grau stellt das Gittersubstrat, Weiß die Hochindex-Schicht und Blau die Rückkopplungsrichtung dar.

basiert auf einer interferenzlithografisch erzeugten Urform [34]. Abformungen desselben Stempels kamen bereits in [22] und [13] erfolgreich zum Einsatz. Die zur Verfügung stehende, strukturierte Fläche liegt bei circa $10\text{ cm} \times 10\text{ cm}$ und kann problemlos in kleinere Probegrößen zugeschnitten werden.

Für die Hochindex-Schicht wurde Tantalpentoxid (Ta_2O_5) mittels Elektronenstrahlverdampfung auf das Substrat aufgebracht (s. Seite 46). Dabei stellte sich heraus, dass bei niedrigen Aufdampfzeiten von 1 \AA/s die Gitter vor dem Erreichen der Endschichtdicke thermische Schäden davon trugen. Deshalb wurde mit Aufdampfzeiten von über 6 \AA/s gearbeitet. Bei Ta_2O_5 handelt es sich um ein dielektrisches Material, welches im sichtbaren Bereich transparent ist und einen Brechungsindex von $n = 2,1$ aufweist.

Als abschließende aktive Laserschicht wurde $\text{Alq}_3\text{:DCM}$ mit einer Schichtdicke von 350 nm und einer Dotierkonzentration von 4 mol\% aufgedampft. $\text{Alq}_3\text{:DCM}$ wurde verwendet, weil es sich um ein sehr gut untersuchtes Material handelt, bei dem viele Materialeigenschaften bekannt sind (s. Abschnitt 3.1.6). Prinzipiell steht aber einer Verwendung von aufgeschleuderten Materialien nichts entgegen. Der gesamte Schichtaufbau ist in Bild 6.7 a) dargestellt.

Für die Untersuchungen wurden homogene Ta_2O_5 -Schichten auf einzelne Substrate aufgebracht. Die Substratgröße betrug circa $2,5\text{ cm} \times 2,5\text{ cm}$. Insgesamt wurden acht Laser mit Tantalpentoxid-Schichten von 0 nm bis 163 nm hergestellt (s. Tabelle 6.4 auf Seite 77). Zur Schichtdickenbestimmung wurden während des Bedampfens Glasproben neben die Lasersubstrate gelegt und anschließend mithilfe eines Profilometers untersucht.

In einer weiteren Untersuchung wurde ein $2,5\text{ cm} \times 5\text{ cm}$ großes Substrat mit einer sich kontinuierlich ändernden Ta_2O_5 -Schicht bedampft. Diese wurde durch das Verschieben eines Abschattungsbleches während des Aufdampfvorganges erzeugt. Die Schichtdickenvariation geschah dabei parallel zu dem Gitter, damit in Rückkopplungsrichtung eine homogene Schichtdicke vorlag (s. Bild 6.7 b). Die Schichtdicke lag zwischen 0 nm und 80 nm und wurde mithilfe eines Schwingquarzes gemessen. Die beiden äußeren Punkte des Substrates entsprechen Stellen, welche entweder durchgehend abgeschattet oder durchgehend bedampft wurden.

6.4.3 Experimentelle Ergebnisse

Bei beiden Untersuchungen konnte festgestellt werden, dass sich die Laserwellenlänge mit steigender Ta_2O_5 -Schichtdicke ins langwellige Spektrum verschiebt (s. Bild 6.8 a) und b). Nach dem Erreichen einer Laserwellenlänge von ungefähr 670 nm existiert ein Sprung zurück auf 610 nm bzw. 620 nm . Dieser Übergang lag bei den Proben mit homogener Schicht bei einer Dicke von 44 nm . Hier konnten gleichzeitig zwei anschwingende Lasermoden beobachtet werden. Danach steigt die Laserwellenlänge erneut an.

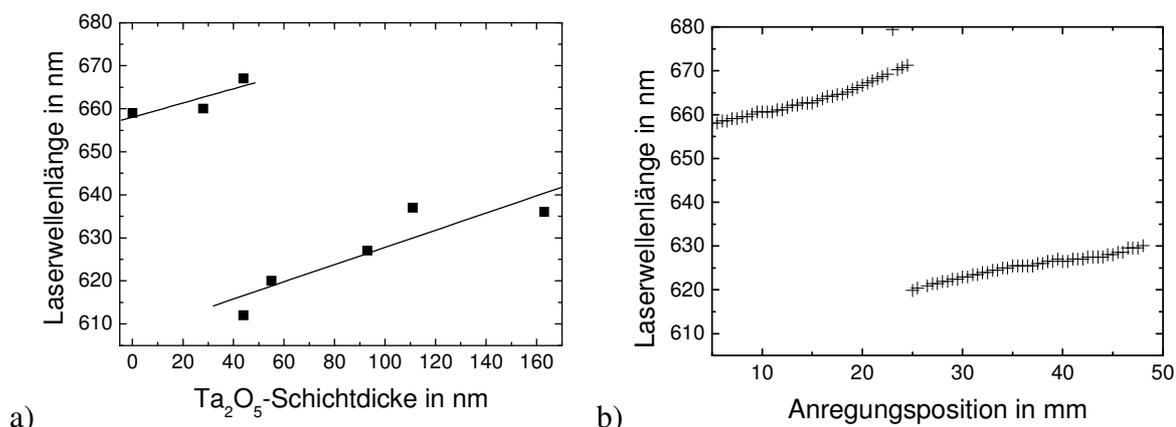


Bild 6.8: a) Abhängigkeit der Laserwellenlänge von der Dicke der Ta_2O_5 -Schicht. Es handelt sich um einzelne Substrate mit einer homogenen Ta_2O_5 -Schicht. Die doppelten Werte bei 44 nm gehören zu zwei unterschiedlich anschwingenden Lasern auf demselben Substrat.
 b) Abhängigkeit der Laserwellenlänge von der Anregungsposition. Es handelt sich um ein Substrat mit stetig steigender Ta_2O_5 -Schichtdicke von 0 nm bis 80 nm.

Nähere Untersuchungen mit winkelaufgelösten Messungen machten insgesamt acht Bänder sichtbar, welche in Bild 6.9 a) mit den Großbuchstaben A bis H gekennzeichnet sind. Zusätzliche polarisationsaufgelöste Messungen (s. Bild 6.9 b) und c) identifizieren die Bänder A, C, E und G als TE-Moden und die anderen als TM-Moden. Zudem zeigt sich durch die Wellenleitersimulationen, dass es sich bei den Bändern A/C um TE_0 -Moden und bei den Bändern E/G um TE_1 -Moden handelt.

Mithilfe eines feineren Spektrometersgitters konnten die Bandlücken für alle homogenen Substrate bestimmt werden. Sie lagen bei einem Wert von circa 2 nm bzw. 6 meV.

Ein Vergleich der winkelaufgelösten Messungen der Substrate untereinander zeigt übereinstimmend mit der Laserwellenlänge eine Verschiebung der Bandstruktur ins langwellige Spektrum (s. Anhang 13.2). Der Sprung der Laserwellenlänge stellt demnach einen Sprung von einer TE_0 - auf eine TE_1 -Mode dar.

In Bild 6.10 a) ist die gemessene Laserschwelle in Abhängigkeit von der Tantalpentoxid-Schicht aufgetragen. Sie liegt bis zu einer Schichtdicke von 44 nm recht hoch und fällt bei 55 nm auf $15 \mu J/cm^2$ ab. Danach nimmt sie mit zunehmender Ta_2O_5 -Schichtdicke leicht ab. Der Vergleich von Laserwellenlänge zu Laserschwelle (s. Bild 6.10 b) lässt vermuten, dass eher die Laserwellenlänge die Laserschwelle beeinflusst als die Dicke der Tantalpentoxid-Schicht. Die Vermutung, dass sich die Mode bevorzugt in der Hochindex-Schicht konzentriert, widerspricht diesen Ergebnissen. Um dies zu überprüfen, wurden zusätzlich Wellenleitersimulationen durchgeführt.

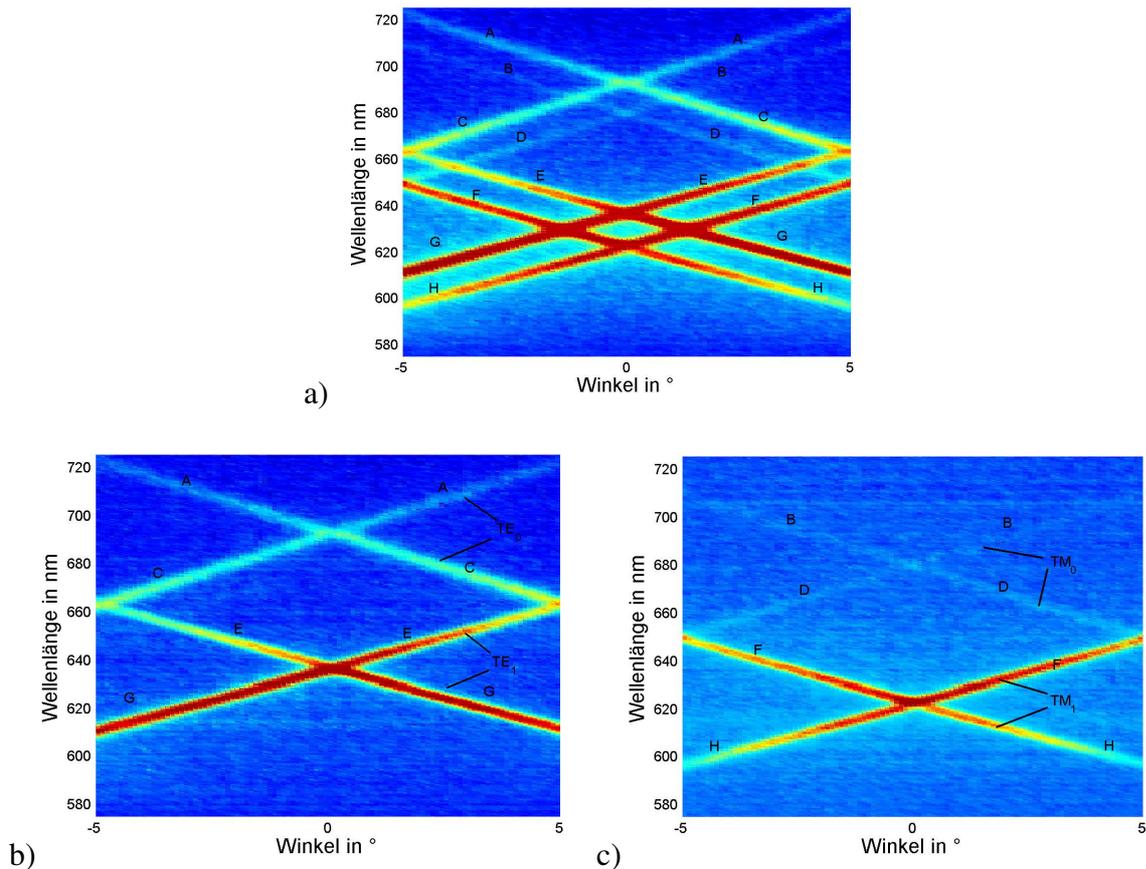


Bild 6.9: a) Winkelaufgelöste Aufnahme einer Probe mit einer 111 nm dicken Tantalpentoxid-Schicht. b)+c) Aufnahme derselben Probe mit einem Polarisator. Man erkennt durch den Polarisator nur noch die TE-(b) und die TM-Mode(c). Die Großbuchstaben sind einzelnen Bändern zugeordnet.

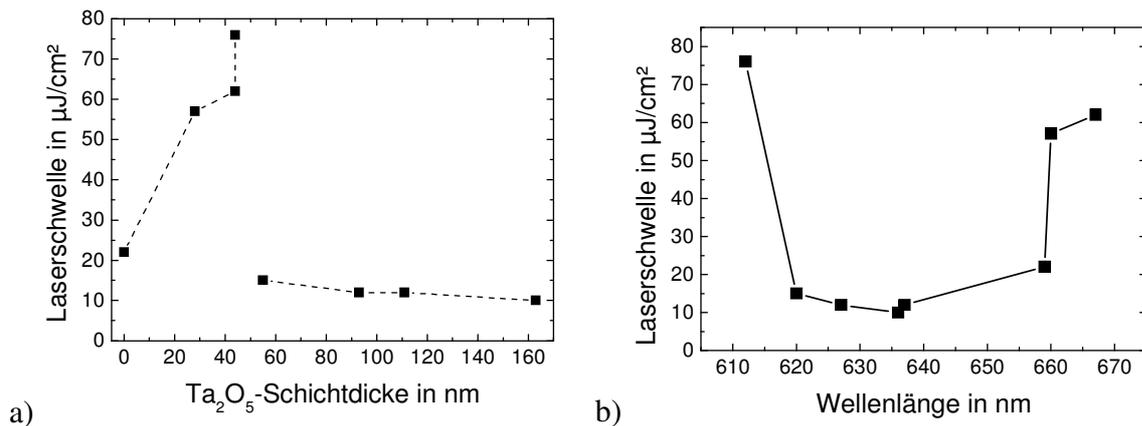


Bild 6.10: a) Laserschwelle in Abhängigkeit von der Ta_2O_5 -Schichtdicke. b) Laserschwelle in Abhängigkeit von der Wellenlänge.

6.4.4 Wellenleitersimulationen der homogenen Hochindex-Schichten

Für die Simulationen der entstehenden Wellenleitermoden wurde ein Programm verwendet, welches die elektrischen Felder im Wellenleiter nach der Transfermatrixmethode berechnet ([52], [53]). Dazu wurde eine Schichtfolge bestehend aus Substrat,

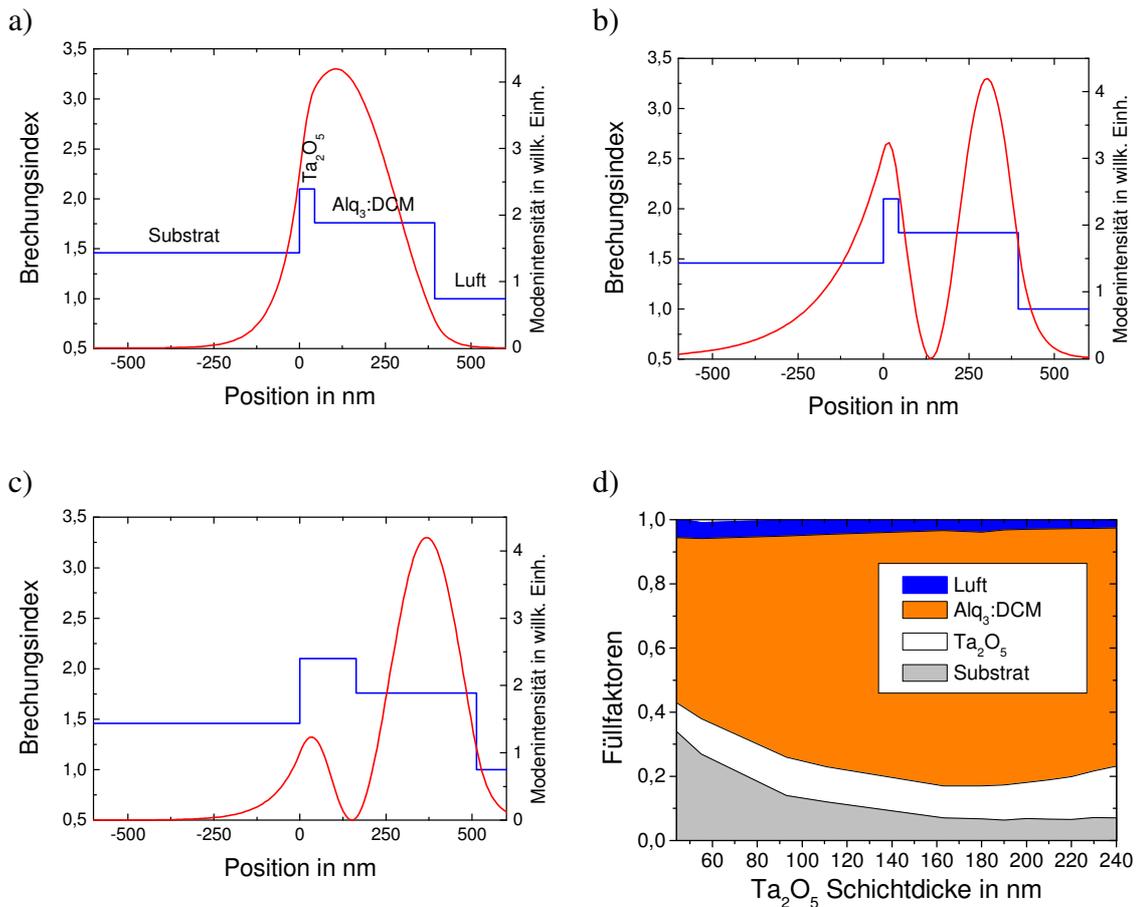


Bild 6.11: Simulierte Intensitätsprofile (rote Linien) für eine a) TE_0 -Mode und eine b) TE_1 -Mode bei einer Tantalpentoxid-Schichtdicke von 44 nm bzw. c) für eine TE_1 -Mode bei einer Schichtdicke von 163 nm. Die Brechungsindizes sind in Blau eingezeichnet und stellen von links nach rechts das Vierschichtsystem Substrat, Ta_2O_5 , Alq_3 :DCM und Luft dar.

d) Füllfaktoren in den jeweiligen Schichten der TE_1 -Mode in Abhängigkeit von der Tantalpentoxid-Schicht. Ab 163 nm handelt es sich um Berechnungen, bei denen keine experimentellen Proben vorlagen. Die Wellenlänge wurde mithilfe des ermittelten effektiven Brechungsindex und der Bragg-Formel abgeschätzt.

Ta_2O_5 , Alq_3 :DCM und Luft mit den jeweiligen Brechungsindizes angenommen (s. Bild 6.7). Die Gitterform der Schichten wurde vernachlässigt. Die Parameter Ta_2O_5 -Schichtdicke und (Laser-)Wellenlänge wurden den Experimenten entnommen.

Es konnten für alle Fälle mindestens eine TE- und eine TM-Mode beobachtet werden. Das Auftreten von einer weiteren TE-Mode, der TE_1 -Mode, wurde erst bei der Ta_2O_5 -Schichtdicke von 44 nm und einer Wellenlänge von 612 nm beobachtet⁴. Exemplarisch sind in Bild 6.11 a) und b) die beiden Modenprofile (rote Linien) für eine TE_0 - und eine TE_1 -Mode bei einer Tantalpentoxid-Schichtdicke von 44 nm dargestellt.

⁴ Theoretisch existiert bei einer Wellenlänge von 612 nm diese Mode bereits ab einer Hochindex-Schicht von 22 nm. In den winkelaufgelösten Messungen kann diese Mode bereits ohne Hochindex-Schicht beobachtet werden (s. Anhang 13.2).

Neben dem Auftreten potenzieller Moden und der Berechnung der Intensitätsprofile erhält man aus den Rechnungen zusätzlich die Füllfaktoren für die unterschiedlichen Gebiete und den effektiven Brechungsindex. Bei einem Vergleich des simulierten Brechungsindex mit dem aus der Bragg-Formel (6.21) ermittelten experimentellen Wert ist es möglich, die potenziellen Moden aus den Simulationen dem Experiment zuzuordnen. Zusätzlich wurde angenommen, dass im Zweifelsfall die Mode mit dem größten optischen Füllfaktor $\Gamma(\text{Alq}_3:\text{DCM})$ der Lasermode entspricht. Dementsprechend konnten nur TE-Moden als Lasermoden identifiziert werden.

Die wichtigsten Simulationsergebnisse sind in Tabelle 6.4 auf Seite 77 aufgeführt. Besonders interessant ist das Verhalten des optischen Füllfaktors durch das Einbringen der Tantalpentoxid-Schicht. Dieser sinkt für die TE_0 -Moden. Dieses Verhalten war zu erwarten, da die Mode zu der Hochindex-Schicht verschoben wird und somit der Anteil des Modenprofils im aktiven Lasermaterial sinkt.

Für die TE_1 -Mode ist allerdings der gegenläufige Effekt zu beobachten (s. Bild 6.11 d). So besitzt die erste Lasermode, welche auf einer TE_1 -Mode läuft, mit 0,51 einen sehr geringen Füllfaktor. Dieser vergrößert sich allerdings auf 0,8 für eine 163 nm dicke Tantalpentoxid-Schicht. Qualitativ lässt sich dieses Verhalten dadurch erklären, dass die TE_1 -Mode das Profil eines Doppelhöckers aufweist (s. Bild 6.11 b). Vereinfacht kann man sagen, dass einer der Höcker im aktiven Material liegt und der andere im Hochindex-Material. Betrachtet man den zweiten Höcker genauer, fällt auf, dass sich bei kleinen Tantalpentoxid-Schichten dieser Teil noch sehr weit in das Substrat hinein ausbreitet. Erst bei dickeren Schichten konzentriert sich dieser Höcker auf die Tantalpentoxid-Schicht (s. Bild 6.11 c). Quantitativ spiegeln dies auch die Füllfaktoren im Substrat wider, was grafisch in Bild 6.11 d) aufbereitet wurde. In diesem Bild ist deutlich zu sehen, dass der Gewinn des optischen Füllfaktors hauptsächlich auf Kosten des Füllfaktors im Substrat geht.

Über die Berechnungen für die vorliegenden Substrate hinaus wurden weitere Simulationen mit Schichtdicken bis zu 240 nm durchgeführt. Die Wellenlänge entsprach dabei einem hypothetischen Laser, welcher mit dem zugehörigen Brechungsindex die Bragg-Formel (6.21) erfüllt.

6.4.5 Diskussion der Ergebnisse

Wie oben beschrieben wurde, handelt es sich beim Sprung der Laserwellenlänge um einen Wechsel der Lasermode von einer TE_0 - auf eine TE_1 -Mode. Der Grund für das Umspringen, obwohl die TE_0 -Mode einen höheren optischen Füllfaktor Γ aufweist, liegt im größeren spektralen Gewinn g von $\text{Alq}_3:\text{DCM}$ bei der entsprechenden Wellenlänge⁵.

⁵ Der spektrale Gewinn $g(\lambda)$ wurde [9] entnommen und kann nur als erste Näherung gesehen werden, da die Dotierkonzentration dort bei 2 mol% lag. Das Gewinnspektrum sollte im vorliegenden Fall deshalb etwas ins langwellige Spektrum verschoben sein. Untersuchungen an DCM2 zeigen aber keine allzu große Beeinflussung durch die Konzentrationsänderung [29].

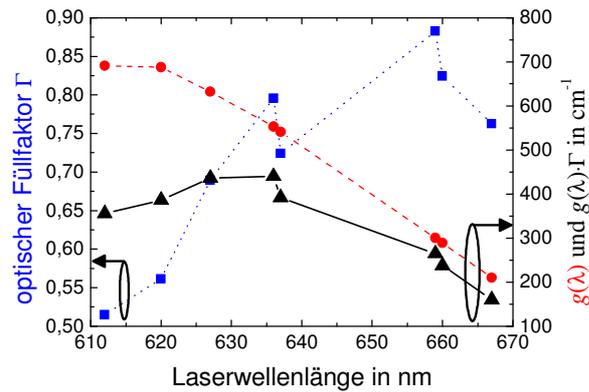


Bild 6.12: Dargestellt ist der optische Füllfaktor Γ (blaue Quadrate), der spektrale Gewinn $g(\lambda)$ (rote Kreise) und deren Produkt (schwarze Dreiecke) in Abhängigkeit von der Laserwellenlänge.

Wie in Abschnitt 3.1.5 beschrieben, geht dieser in den für die Laserschwelle wichtigen modalen Gewinn g_{mod} ein. Dieser ist definiert als

$$g_{\text{mod}} = \Gamma \cdot g(\lambda) - \alpha(\lambda) \quad (6.22)$$

wobei $\alpha(\lambda)$ die Absorption ist und hier als konstant betrachtet wird. Betrachtet man das Produkt $\Gamma \cdot g(\lambda)$ für die einzelnen Substrate, ist zu erkennen, dass dies für dicke Tantalpentoxid-Schichten maximal wird (s. Tabelle 6.4). Dies liegt zum einen am höheren optischen Gewinn $g(\lambda)$. Zum anderen liegt es aber auch an den mit der Hochindex-Schicht steigenden optischen Füllfaktoren $\Gamma(\text{Alq}_3:\text{DCM})$ der TE_1 -Mode, welche mit Werten von 0,8 nahe an Laser ohne Tantalpentoxid-Schicht kommen.

In Bild 6.12 ist dieser Sachverhalt in Abhängigkeit von der Laserwellenlänge grafisch aufbereitet. Neben dem spektralen Gewinn $g(\lambda)$ (rote Kreise) und den optischen Füllfaktoren $\Gamma(\text{Alq}_3:\text{DCM})$ (blaue Quadrate) ist auch das Produkt $\Gamma \cdot g(\lambda)$ (schwarze Dreiecke) aufgetragen. Es ist deutlich erkennbar, dass sich durch die Faltung ein Plateau bei ungefähr 630 nm ausbildet. Dies erklärt auch die geringe Änderung der Laserschwelle bei Tantalpentoxid-Schichten von 93 nm bis 163 nm.

Das Umspringen auf eine günstigere Mode bzw. hin zu einem günstigeren $\Gamma \cdot g(\lambda)$ -Wert begrenzt die Durchstimbarkeit der Laserwellenlänge. Allerdings fallen nur Wellenlängen heraus, welche bereits recht hohe Laserschwellen aufweisen. Für größere Tantalpentoxid-Schichten kann aus den zusätzlichen Simulationen geschlossen werden, dass der optische Füllfaktor ab ungefähr 180 nm wieder sinkt (s. Bild 3.2 d). Somit ergibt sich theoretisch eine größere Bandbreite der Durchstimbarkeit, als experimentell gezeigt werden konnte. Da die berechnete Wellenlänge bei einer Schichtdicke von 240 nm bei 657 nm liegt, müsste es insbesondere möglich sein, den gesamten Spektralbereich von 612 bis 667 nm abzudecken.

Die niedrigste Laserschwelle lag bei diesen Versuchen mit $10 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ um ein Drittel niedriger als in vergleichbaren Veröffentlichungen⁶ [13].

Die Vermutung, dass die Kopplungskonstante aufgrund größerer Anteile der geführten Mode im Gitterbereich steigt, lässt sich nicht bestätigen. So konnte experimentell keine Aufweitung der Bandlücke beobachtet werden, was ein Anzeichen für eine stärkere Rückkopplung ist (s. Abschnitt 3.3.2). Dies deckt sich auch mit der Tatsache, dass der Füllfaktor der Ta_2O_5 -Schicht ab einer Schichtdicke von 44 nm nahezu unverändert bleibt.

6.4.6 Zusammenfassung und Ausblick

Die Verschiebung der Laserwellenlänge auf einem Substrat mit fester Gitterkonstante konnte durch die Schichtdickenvariation einer Zwischenschicht erfolgreich realisiert werden. Dadurch besteht nun die Möglichkeit, auch für Materialien, welche nicht aufgedampft werden können, großflächig durchstimmbare Laser herzustellen.

Bei der genauen Analyse der Daten wurde festgestellt, dass mit steigender Hochindex-Schicht die Lasermode von einer TE_0 - auf eine TE_1 -Mode springt. Zusammen mit dem spektralen Gewinn konnten so die niedrigen Laserschwellen auch bei großen Tantalpentoxid-Schichtdicken erklärt werden. Dem kam zugute, dass mit steigender Ta_2O_5 -Schichtdicke die optischen Füllfaktoren der TE_1 -Moden stiegen.

⁶ In dieser Veröffentlichung wurde ein Lasersubstrat verwendet, welches vom selben Nickelstempel abgeformt wurde. Ebenfalls wurde Alq_3 :DCM als Lasermaterial genutzt.

Tabelle 6.4: Experimentelle und simulierte Daten der Laser mit homogener Hochindex-Schicht. Die Wellenleitersimulationen beruhen auf einem planaren Vier-Schichtsystem, wobei die Alq₃:DCM Schicht mit 350 nm angenommen wurde. Die Gewinnwerte wurden aus [22] extrahiert. Aufgrund von Abweichungen bei der Dotierkonzentration können sie etwas abweichen.

Ta ₂ O ₅					
Schichtdicke	λ_{Laser}	Laserschwelle	n_{eff} (Experiment)	n_{eff} (Simulation)	Mode
-	659 nm	22 $\mu\text{J}/\text{cm}^2$	1,65	1,65	TE ₀
28 nm	660 nm	57 $\mu\text{J}/\text{cm}^2$	1,65	1,68	TE ₀
44 nm	667 nm	62 $\mu\text{J}/\text{cm}^2$	1,67	1,70	TE ₀
44 nm	612 nm	76 $\mu\text{J}/\text{cm}^2$	1,53	1,49	TE ₁
55 nm	620 nm	15 $\mu\text{J}/\text{cm}^2$	1,55	1,51	TE ₁
93 nm	627 nm	12 $\mu\text{J}/\text{cm}^2$	1,58	1,55	TE ₁
111 nm	637 nm	12 $\mu\text{J}/\text{cm}^2$	1,59	1,56	TE ₁
163 nm	636 nm	10 $\mu\text{J}/\text{cm}^2$	1,59	1,60	TE ₁

Ta ₂ O ₅					
Schichtdicke	$\Gamma(\text{Alq}_3:\text{DCM})$	$\Gamma(\text{Ta}_2\text{O}_5)$	$\Gamma(\text{Substrat})$	$g(\lambda_{\text{Laser}})$	$g(\lambda_{\text{Laser}}) \cdot \Gamma(\text{Alq}_3:\text{DCM})$
-	0,88	-	0,02	300 cm^{-1}	265 cm^{-1}
28 nm	0,82	0,05	0,11	289 cm^{-1}	238 cm^{-1}
44 nm	0,76	0,10	0,12	210 cm^{-1}	160 cm^{-1}
44 nm	0,51	0,09	0,34	691 cm^{-1}	356 cm^{-1}
55 nm	0,56	0,11	0,27	688 cm^{-1}	386 cm^{-1}
93 nm	0,69	0,12	0,14	632 cm^{-1}	436 cm^{-1}
111 nm	0,72	0,11	0,11	541 cm^{-1}	392 cm^{-1}
163 nm	0,80	0,10	0,10	553 cm^{-1}	440 cm^{-1}

6.5 Schräg bedampfte Hochindex-Schichten

Der gerade beschriebene Einsatz von Hochindex-Schichten diene zur gezielten Beeinflussung der Emissionswellenlänge. Die Untersuchungen der Bandstruktur ergaben, dass, auch bei zunehmender Dicke der Hochindex-Schicht, die Bandlücke mit einer Breite von ~ 2 nm konstant blieb.

Eine Vergrößerung der Bandlücke ist in vielerlei Hinsicht interessant. So ist zu erwarten, dass die Bänder an den Umkehrpunkten flacher werden, was die Laserschwelle positiv beeinflussen kann. Zudem wäre für die Untersuchung von Defektlasern eine große Bandlücke von Vorteil (s. Seite 27). Der Gedanke hinter der Schrägbedampfung von Laserresonatoren mit Hochindex-Material ist, dass sich nur lokal Material auf der Resonatorstruktur abscheidet (s. Bild 6.13 b). Die Schrägbedampfung sollte eine größere Brechungsindexmodulation und dadurch eine breitere Bandlücke erzeugen.

Dieses Kapitel beschäftigt sich mit den Voruntersuchungen an schräg bedampften linearen Gittern. Die Experimente dazu werden nach dem Literaturüberblick erläutert. Der Abschnitt 6.5.3 befasst sich mit der Auswertung und Diskussion der Ergebnisse. Am Ende des Kapitels wird ein Ausblick über weitere Forschungsrichtungen gegeben.

6.5.1 Stand der Technik

In [34] wird über den Einsatz der Schrägbedampfung für organische Laser mit quadratischen Gitterresonatoren berichtet. Die Substrate aus Acryllack weisen eine Gitterperiode von 300 nm auf. Als Hochindexmaterial wurde Titandioxid mit einem Brechungsindex von $n = 2,0-2,1$ verwendet. Das Substrat war unter einem Winkel von 70° eingespannt. Die Gitterachsen der Proben wurden so ausgerichtet, dass sie einen Winkel von 45° zur Aufdampfrichtung bildeten. Dies sollte eine Symmetriebrechung zwischen den beiden Achsen verhindern, was aber nicht bei allen Proben gelang. Als Lasermaterial wurde anschließend MeLPPP aufgeschleudert.

Bei Substraten, deren Symmetrie durch das Aufdampfen gebrochen wurde, konnte anschließend keine zweidimensionale Lasertätigkeit mehr beobachtet werden. Dies wurde mit den unterschiedlichen Brechungsindizes und der daraus verschobenen Lage der Moden entlang der beiden Gitterrichtungen begründet.

Das Verhalten der bedampften Resonatoren gegenüber unbedampften Referenzproben zeigte, dass bei kleinen Anregungsflächen (~ 80 μm Durchmesser) Emissionsintensität und Laserschwelle vergleichbar waren. Für größere Flächen (~ 150 μm Durchmesser) zeigten die schräg bedampften Proben jedoch eine geringere Intensität und eine höhere Laserschwelle auf. Diese Beobachtung wurde auf eine erhöhte Absorption durch das Titandioxid zurückgeführt. Zudem schwangen bei größeren Anregungsflächen unterschiedliche Lasermoden an, was auf eine durch die Bedampfung verursachte

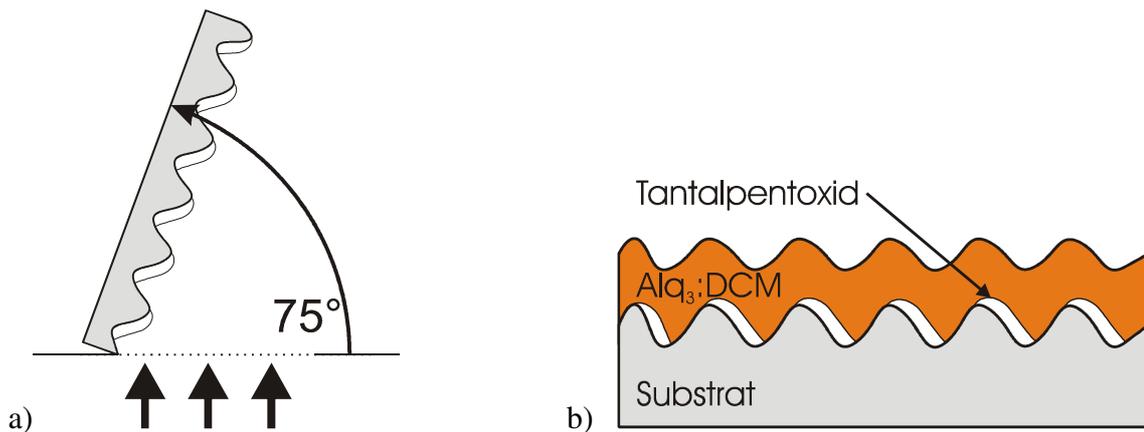


Bild 6.13: a) Schema der Probenlage im Aufdampfpräzipienten. Die schwarzen Pfeile symbolisieren die Aufdampfrichtung.

b) Schichtaufbau der verwendeten Laser, bestehend aus einem Substrat (grau), der schräg gedampften Ta_2O_5 -Schicht (weiß) und dem $Alq_3:DCM$ (orange).

Unordnung zurückgeführt wird. Diese Inhomogenität wird dadurch untermauert, dass unterschiedliche Stellen auf den Proben leicht voneinander abweichende Ergebnisse aufweisen.

6.5.2 Experimente

Für die Experimente wurden dieselben Lasersubstrate wie bei den homogenen Tantalpentoxid-Schichten (s. Seite 69) genutzt. Es handelt sich um lineare Gitter mit einer Periode von 400 nm. Während des Bedampfens mit Tantalpentoxid waren die Substrate in einem Winkel von ungefähr 75° verkippt und die Gitter senkrecht zur Aufdampfrichtung ausgerichtet (s. Bild 6.13 a). Zusätzlich lag eine Glasprobe unter 0° mit im Probenhalter, um die Schichtdicke zu kontrollieren. Da diese Glasprobe nicht verkippt war, lag die so gemessene Schichtdicke höher, als auf dem Lasersubstrat in Wirklichkeit abgeschieden wurde. Durch eine geometrische Betrachtung kann abgeschätzt werden, dass die durchschnittliche Schichtdicke um circa ein Viertel geringer ist. Diese durchschnittliche Schichtdicke wird auch im weiteren Verlauf angegeben. Es sei aber darauf hingewiesen, dass das Material durch die Gitterform auf den Substraten nicht gleichmäßig verteilt ist.

Auf die Substrate wurden $Alq_3:DCM$ -Schichten mit einer Schichtdicke von 350 nm und einer Dotierkonzentration von $\sim 3 \text{ mol}\%$ aufgedampft. Der vollständige Schichtaufbau ist in Bild 6.13 b) zu sehen.

Es wurden insgesamt sechs Substrate mit Schichtdicken zwischen 12 nm und 28 nm schräg bedampft. Ein Lasersubstrat ohne Ta_2O_5 -Schicht diente zudem als Referenzprobe.

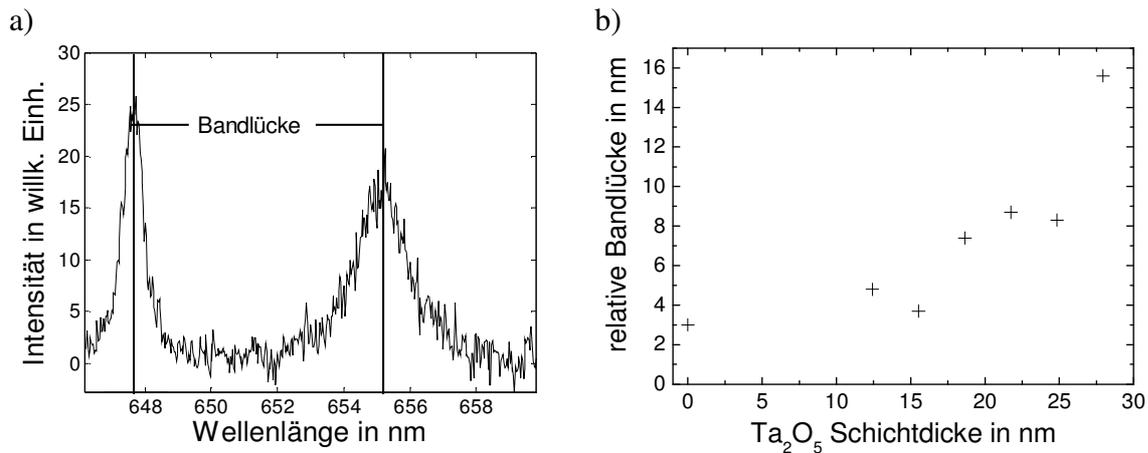


Bild 6.14: a) Spektrum einer Probe mit 12 nm Ta_2O_5 -Schicht. Das Spektrum wurde unter einem Winkel von 0° detektiert. Die Bestimmung der relativen Bandlücke ist ebenfalls eingezeichnet.

b) Quantitative Auswertung der winkelaufgelösten Aufnahmen. Es ist die Ta_2O_5 -Schichtdicke gegen die ermittelte relative Bandlücke aufgetragen.

6.5.3 Auswertung und Diskussion

In Bild 6.15 sind die winkelaufgelösten Aufnahmen aller Lasersubstrate abgebildet. Mit steigender Schichtdicke vergrößert sich die Bandlücke zusehends. Bei der dicksten Schichtdicke von 28 nm reichte das feinste Gitter nicht mehr zur Bestimmung der Bandlücke aus. Deshalb wurde hier auf das nächstgrößere Gitter zurückgegriffen.

Zur quantitativen Bestimmung der relativen Bandlücke wurde die spektrale Entfernung der Intensitätsmaxima der Bänder vermessen. Dies ist in Bild 6.14 a) exemplarisch für die Probe mit einer 12 nm dicken Schicht dargestellt. Die Werte sind in Bild 6.14 b) grafisch zusammengefasst. Die größte Bandlücke von ungefähr 15,5 nm ist sehr bemerkenswert. Sie liegt um einen Faktor 5 höher als bisher in Zusammenhang mit organischen Lasern berichteten Bandlücken. Die Beobachtung ist umso erstaunlicher, als selbst bei homogenen Tantalpentoxid-Schichten bis zu 163 nm keine Veränderung der Bandlücke beobachtet wurde (s. Abschnitt 6.4). Dies lässt auch vermuten, dass diese Aufweitung speziell durch das Fehlen einer zusammenhängenden Ta_2O_5 -Schicht zustande kommt.

Eine weitere Vermutung konnte durch den Vergleich der winkelaufgelösten Aufnahmen bestätigt werden. Die Bänder werden mit zunehmender Bandlücke flacher. Dies schlägt sich jedoch nicht auf die Laserschwelle nieder. Diese ist bei der Referenzprobe mit $\sim 3 \mu J/cm^2$ am geringsten, während sie für die bedampften Substrate bis zu einem Faktor zwei darüber liegen. Ein Zusammenhang zwischen Schichtdicke und Laserschwelle konnte allerdings nicht beobachtet werden, weswegen diese nicht abgebildet wird. Die Laserwellenlänge selber liegt zwischen 640 nm und 652 nm und variiert ebenfalls leicht.

Auffallend ist, dass mit Ausnahme der unbedampften Probe, alle Proben auf dem kurzwelligen Band Lasertätigkeit zeigen. Dies kann mit dem Rollentausch der aktiven

Schicht, von einer Hochindex- zu einer Niedrigindex-Schicht, zusammenhängen. Für eine niedrige Laserschwelle ist es vorteilhaft, dass sich die Feldverteilung im aktiven Material konzentriert. Bei der unbedampften Probe schwingt die Lasertätigkeit deshalb zuerst auf dem langwelligen Band an, da hier die zugehörige Feldverteilung im Hochindex-Material ($\text{Alq}_3\text{:DCM}$) konzentriert ist (s. Abschnitt 3.3.2). Durch die Anwesenheit des Hochindexmaterials kann deswegen das kurzwellige Band für Lasertätigkeit attraktiver werden. Hier ist die Feldstärke verstärkt in Bereichen mit niedrigem Brechungsindex, also in diesem Fall dem $\text{Alq}_3\text{:DCM}$, hoch.

Die Bänder der TM-Mode sind, für das Lasersubstrat mit einer Tantalpentoxid-Schichtdicke von 28 nm, ebenfalls in Bild 6.15 zu sehen. Es handelt sich dabei um die kurzwellige Bandlücke. Diese Bänder existieren bei allen Proben und sind ungefähr um 15 nm ins blaue Spektrum verschoben. Der Abstand zwischen den Bändern verändert sich allerdings nicht.

6.5.4 Zusammenfassung und Ausblick

Die Bandaufweitung durch die schräge Bedampfung mit einer Hochindex-Schicht auf 15,5 nm ist ein bemerkenswertes Ergebnis. Um diesen Effekt sinnvoll einzusetzen, bietet es sich in einem ersten Schritt an, lineare Gitter mit Phasensprüngen zu nutzen (s. Abschnitt 3.3.1). Diese Substrate sind vergleichbar mit den Defektlasern und wären ein einfaches System um den Einfluss der Hochindex-Schicht weiter zu untersuchen. Für die Herstellung der Gitter müsste auf (elektronenstrahl-)geschriebene Substrate zurückgegriffen werden. Die Erweiterung auf zweidimensionale Defektgitter würde dann den nächsten Schritt bilden.

Die Anwendung auf defektfreie zweidimensionale Resonatoren wie dem quadratischen Gitter wäre eine weitere Forschungsrichtung. Hier ist die in [34] vermiedene Symmetriebrechung zwischen den beiden Gitterrichtungen interessant. Denkbar wäre das Erzielen von Ergebnissen wie sie in [24] beschrieben werden. Hier wurde durch eine Symmetriebrechung in Form von Ellipsen als Gitterpunkte die Bandstruktur gezielt beeinflusst. Die resultierende Laserstrahlung wurde dadurch linear polarisiert.

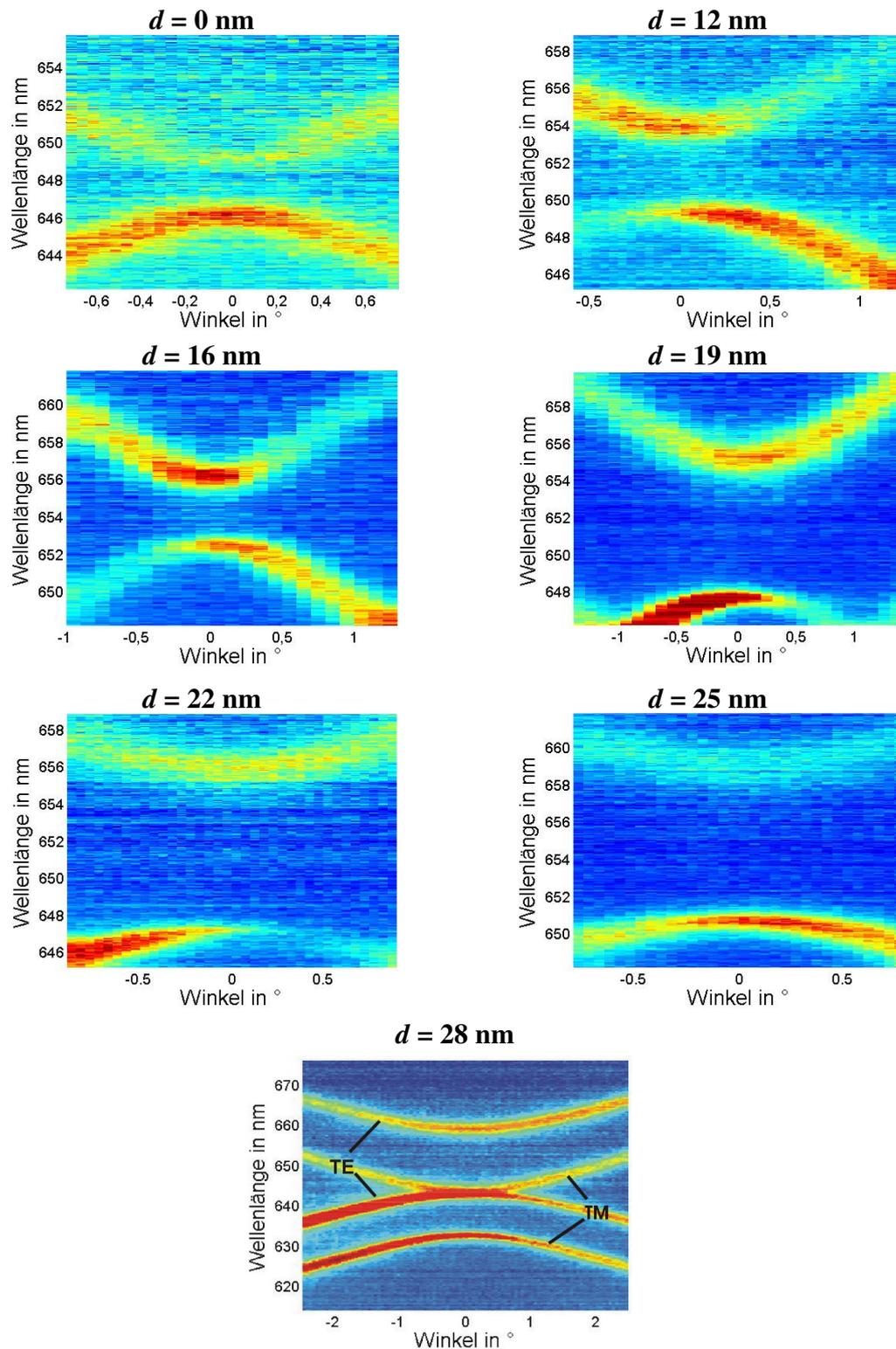


Bild 6.15: Winkelaufgelöste Aufnahmen diverser mit Ta_2O_5 schräg bedampfter Proben. Über den Proben stehen die jeweiligen an Vergleichsproben gemessenen Schichtdicken d der Hochindex-Schicht. Bei einer Schichtdicke von 28 nm wurde ein größeres Spektrometergitter verwendet. Bei dem unteren Band handelt es sich um die TM-Mode, welche bei diesen Versuchen aber keine Bedeutung hatte.

7 Strukturierung durch Laserablation

Zur Herstellung von Laserresonatoren können unterschiedliche Konzepte genutzt werden. Dabei stellt die schlechte Prozessierbarkeit organischer Materialien aufgrund der hohen Löslichkeit eine große Herausforderung dar. So basieren die Photonischen-Kristall-Resonatoren überwiegend darauf, dass die Substrate mithilfe konventioneller Elektronen- oder Photolithografiertechniken vorstrukturiert werden. Diese Verfahren beinhalten allerdings zahlreiche Prozessschritte, was ein Nachteil dieser Techniken ist. Die Herstellung von Abformwerkzeugen wie einem Nickelstempel (s. Abschnitt 4.1.5) reduziert die Schritte auf einen einmaligen Aufwand. Dieser wird jedoch mit einer festen Resonatorgeometrie erkauft. Um diesen Nachteil zu minimieren, bieten sich homogene Hochindex-Schichten als Lösungsansatz an (s. Abschnitt 6.4).

Alternative Verfahren, wie die Strukturierung der Laserschicht oder einer Deckschicht, umgehen die Probleme. Es werden hierfür allerdings spezielle Polymere benötigt ([54], [43], [44]), die bisher allesamt isolierend waren und damit für elektrische Bauelemente ungeeignet sind.

Für einen elektrisch gepumpten Laser wäre es aber interessant, ein Verfahren zu besitzen, mit dem organische Schichten unabhängig vom Materialtyp direkt strukturiert werden können. Dazu kann zum Beispiel die Oberfläche eines Abformwerkzeuges direkt in die aktive Schicht übertragen werden ([55], [56], [57]). Allerdings hätte man dann wieder die oben beschriebenen Nachteile.

Ein Verfahren, welches diese Vorteile ebenfalls bietet und zugleich flexibel im Hinblick auf die Gittereigenschaften ist, stellt die Laserinterferenzablation dar. Hier wird ein Oberflächengitter direkt in einen planaren Wellenleiter, bestehend aus Substrat und aktiver Schicht, ablatiert. Dazu werden die lokalen Leistungsschwankungen eines linearen Interferenzmusters genutzt. Ist die Leistungsdichte groß genug, kann es lokal

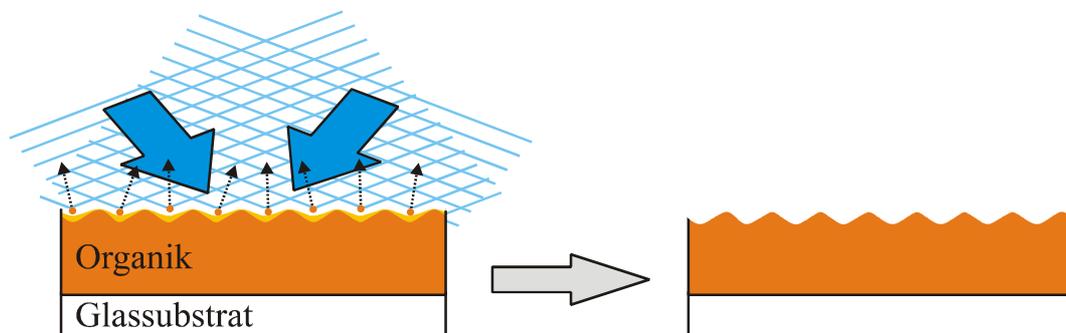


Bild 7.1: Schematische Darstellung der Laserinterferenzablation. Zwei räumlich und zeitlich kohärente Laserstrahlen (als blaue ebene Wellen dargestellt) überlagern sich zu einem linearen hell-dunkel Muster auf der Probenoberfläche (hier im helleren Orange angedeutet). Dadurch kommt es zu lokaler Ablation der Schicht und ein Oberflächengitter bleibt zurück (rechter Teil des Bildes).

zu Ablation in Form eines Oberflächengitters kommen. Schematisch ist die Laserinterferenzablation in Bild 7.1 skizziert. Die Erweiterung auf zweidimensionale Strukturen kann dann analog zur konventionellen Laserinterferenzlithografie durch Drehen des Substrates und erneutes Ablatieren erfolgen.

Ziel war die direkte Erzeugung eines eindimensionalen Oberflächengitters in einem organischen Halbleitermaterial, bestehend aus Alq_3 :DCM. Neben der Herstellung von DFB-Lasern sollte zudem mehr über das Ablationsverhalten von Alq_3 :DCM herausgefunden werden.

Zur Ablation eines Materials sind die beiden folgenden Kriterien entscheidend:

1. Hoher Absorptionskoeffizient bei der Bestrahlungswellenlänge
2. Möglichst geringe Kontamination der Oberfläche durch ablatierte Produkte

In den folgenden Abschnitten wird zunächst der Stand der Technik zu Beginn der Arbeiten vorgestellt. Danach werden der verwendete experimentelle Aufbau und die Probenstruktur erläutert. Abschnitt 7.3 stellt die erzielten Ergebnisse der homogenen Ablation vor, während Abschnitt 7.4 über die durchgeführten interferenzlithografischen Versuche und die Charakterisierung der Lasereigenschaften berichtet. Den Abschluss bildet eine kurze Zusammenfassung mit Ausblick. *(Teile der folgenden Ergebnisse wurden bereits veröffentlicht [58], werden in diesem Kapitel allerdings ausführlicher beschrieben.)*

7.1 Stand der Technik

Die Laserinterferenzablation wurde bisher erfolgreich für nichtleitende Polymere [54], aber auch an harten, optischen Materialien und Wellenleiter [59] eingesetzt. Durch den Zusatz eines Laserfarbstoffes bei den nichtleitenden Polymeren gelang es zudem, Lasertätigkeit zu beobachten. Die resultierenden DFB-Laser bestanden aus dem mit 2 Gewichtsprozent DCM dotiertem Gastmaterial PST-Co-VBT. Als Pulsleistung reichten 7 mJ/cm^2 bei einer Laserwellenlänge von 266 nm aus, um die Gitter zu erzeugen. Die Laserschwelle lag mit $0,25 \text{ } \mu\text{J/cm}^2$ extrem niedrig.

Über das Ablationsverhalten von aufgedampften Alq_3 -Einzelschichten, wie sie in dieser Arbeit verwendet wurden, gibt es zurzeit keine Veröffentlichungen. Dies hängt zum Teil damit zusammen, dass die Ablation eher für die Strukturierung der gesamten OLED interessant ist. Die Ablation bietet sich aber auch als Alternative zum thermischen Verdampfen an, da als Ausgangsstoff das Material in Form einer gepressten Schicht oder einer gefrorenen Lösung genutzt werden kann. Dies wird bei der PLD (pulsed laser deposition) bzw. dem MAPLE (matrix-assisted pulsed laser evaporation) getan. Bei der PLD wird unter Vakuum mit einem gepulsten Laser auf das Ausgangsmaterial geschossen. Mit ausreichend hoher Pulsleistung lösen sich Fragmente aus der Oberfläche und können sich dann auf ein Substrat niederschlagen. MAPLE stellt

eine Modifizierung dieses Verfahrens dar, da hier das Material in Lösung gebracht und gefroren wird. Die Laserpulse erwärmen die (schnell flüchtigen) Lösungsmittel, welche beim Verdampfen die gelösten Stoffe mitreißen. Beide Verfahren bieten den Vorteil, dass zusätzlich zum eigentlich gewünschten Material auch noch weitere Stoffe beigemischt werden können, welche die entstehende Schicht vergüten. Zudem können die auftreffenden Teilchen höhere Energien als aufgedampfte Partikel erreichen. Dies wird für kompaktere und hochwertigere Schichten genutzt. Daneben eröffnen sich auch für größere Materialklassen neue Herstellungsmöglichkeiten.

Für diese Arbeit ist insbesondere die Veröffentlichung von Yang et al. interessant [60], da hier ähnliche Voraussetzungen vorlagen. Sie nutzten in ihren PLD-Experimenten einen bei 355 nm emittierenden Nd:YAG-Laser mit Pulslängen von 10 ns. Bei ihren Ausgangsmaterialien handelte es sich um unter hohem Druck gepresste Alq₃-Schichten. Die Untersuchungen ergaben unter anderem, dass die hergestellten Schichten bei Pulsleistungen unterhalb von 20 mJ/cm² keine Veränderungen im Photolumineszenzspektrum zeigten. Oberhalb von 25 mJ/cm² konnten allerdings starke Degradationseffekte beobachtet werden. Da die dortigen Photolumineszenzmessungen mit dem gleichen Laser bei Pulsleistungen von 2 mJ/cm² durchgeführt wurden, ist davon auszugehen, dass die Leistung unterhalb der Ablationsschwelle lag.

Die Unterschiede zu den in dieser Arbeit durchgeführten Versuchen lagen neben dem unterschiedlichen Lasersystem darin, dass bei der PLD die Ablationsprodukte untersucht wurden. Zudem war das Ziel, eine glatte Oberfläche zu erzeugen. Aussagen über die Möglichkeit einer Strukturierung von Alq₃ existieren deshalb nicht.

7.2 Probenherstellung

Die Experimente zur Laserinterferenzablation wurden am *Institute of Electronic Structure and Laser (IESL)* der *Foundation for Research and Technology - Hellas (FORTH)* in Heraklion in Griechenland aufgebaut und durchgeführt⁷. Das Versuchsschema ist Bild 7.2 zusehen. Als Pumplaser stand ein frequenzverdreifender Nd:YAG-Laser mit einer Emissionswellenlänge von 355 nm, einer Pulslänge von 150 ps und einer Kohärenzlänge von 3 cm zur Verfügung. Die Repetitionsrate war bei allen Experimenten auf 10 Hz eingestellt. Die Leistung des Lasers konnte durch Drehen eines variablen Abschwächers im Strahlengang verändert werden. Um die Homogenität der Ablationsfläche zu erhöhen, wurde zusätzlich eine wackelnde Glasplatte eingebaut, welche für einen geringen, stetigen Versatz des Strahles zwischen den einzelnen Pulsen sorgte. Um auf der Probe eine Ablationsfläche von circa 3,6 mm Durchmesser zu erhalten, stand eine Linse mit entsprechender Brennweite vor dem Umlenkspiegel.

⁷ Dies geschah im Rahmen des dreiwöchigen Projektes „Fabrication of organic DFB lasers by direct laser ablation in Alq₃:DCM layers“ und wurde von der EU durch das Forschungsprogramm FP6 („Laserlab-Europe“ RII3-CT-2003-506350) unterstützt.

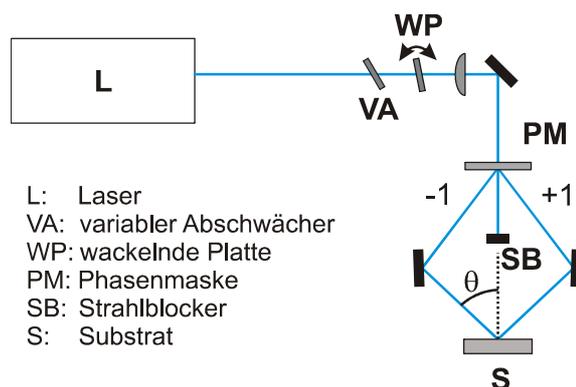


Bild 7.2: Schema des Laserinterferenzablationsaufbaus.

Dieser lenkte den Laserstrahl senkrecht auf eine Phasenmaske mit einer Periode von 1064 nm, wo er sich in die verschiedenen Beugungsmaxima aufteilte. Zwei Spiegel führten die beiden ersten Ordnungen wieder auf der Probe zusammen. Dabei wurde darauf geachtet, dass die zurückgelegten Wege und die Winkel zwischen Probennormalen und Strahlengang identisch waren, damit die beiden Strahlen zeitlich und räumlich kohärent überlagerten. Auf der Probe konnte sich so ein lineares Interferenzmuster bilden, was bei entsprechenden Leistungsdichten zu einer lokalen Ablation führte. Bei einem Einfallswinkel θ zur Probennormalen und der bekannten Laserwellenlänge $\lambda_{\text{Laser}} = 355 \text{ nm}$ kann die Periode Λ des Interferenzmusters über:

$$\Lambda = \frac{\lambda_{\text{Laser}}}{2 \cdot \sin \theta} \quad (7.23)$$

berechnet werden. Die entstandenen Gitter wurden mithilfe der in Abschnitt 5.2 beschriebenen optischen Gittercharakterisierung auf ihre Gitterperiode und Beugungseffizienz untersucht.

Für die Versuche wurden $\text{Alq}_3\text{:DCM}$ Schichten mit Dicken zwischen 175 nm und 300 nm auf ein Glassubstrat ($2,5 \text{ cm} \times 2,5 \text{ cm}$) aufgedampft. Die Dotierkonzentration lag bei ungefähr 5 mol%. Die Schicht bildet mit dem Substrat einen Wellenleiter, welcher über das ablatierte Oberflächengitter den für Lasertätigkeit notwendigen optischen Rückkopplungsmechanismus erhält.

7.3 Homogene Ablation

Um das Ablationsverhalten von $\text{Alq}_3\text{:DCM}$ zu untersuchen und die optimalen Parameter zu bestimmen, wurden Proben bei unterschiedlichen Leistungsdichten und Pulszahlen auf einer Fläche von $3 \times 3 \text{ mm}$ homogen bestrahlt. Die Proben befanden sich dazu nach dem Abschwächer im Strahlengang des Aufbaus (s. Bild 7.2). Die Experimente mit unterschiedlichen Leistungsdichten aber konstanten Pulszahlen wurden jeweils auf demselben Glassubstrat in einem ausreichenden Abstand durchgeführt. Bei den anschließenden Absorptionmessungen lag der Untersuchungsbereich zwischen 350 nm und 600 nm.

In Bild 7.3 a) sind die normierten Spektren für eine Ablationsdosis von 13 mJ/cm^2 sowie die verschiedenen Anzahlen an Laserpulsen aufgetragen. Man erkennt zwei Absorptionsmaxima bei Wellenlängen um 389 nm und 490 nm . Das erste Maximum kann dem Alq_3 und das langwelligere Maximum dem DCM zugeordnet werden. Vor den Versuchen sind diese Maxima gut sichtbar. Je mehr Pulse erfolgen, desto breiter werden die Maxima. Dies deutet auf eine Zerstörung der nicht ablatierten Schicht durch Photooxidation hin [62]. Ein solches Verhalten ist bei Leistungsdichten von 5 mJ/cm^2 bzw. 7 mJ/cm^2 nicht zu beobachten. Bei Versuchen mit 20 mJ/cm^2 wurde dagegen die komplette Schicht innerhalb weniger Pulse vollständig ablatiert.

Eine genauere Auswertung bestätigt diese qualitativen Aussagen anhand der Absorptionsspektren. Dazu wurden, wie in Bild 7.3 b) zu sehen ist, die Absorption bei den beiden Maxima für Alq_3 und DCM gegen die Anzahl der Pulse aufgetragen. Man erkennt nur für Leistungsdichten von 13 mJ/cm^2 eine wirkliche Abnahme der Absorption. Bei Pulsleistungen von 5 bzw. 7 mJ/cm^2 ändert sich die Absorption dagegen kaum. Wie schon die Spektren in Bild 7.3 a) vermuten lassen, nimmt die Absorption für DCM schneller ab als die für Alq_3 . Dieses Verhalten kann nicht eindeutig erklärt werden, da es auf zwei unterschiedlichen Prozessen beruhen kann. Ein Prozess ist eine stärkere Schädigung des DCMs, was den Absorptionskoeffizienten stärker sinken lassen würde. Der andere Prozess beruht auf der Abnahme der Schichtdicke und unterschiedlichen Absorptionskoeffizienten der beiden Materialien. So verläuft die Absorption nach dem Beer'schen Gesetz exponentiell. Da Alq_3 mit knapp 80% Absorption bereits in einem flachen Bereich der Exponentialfunktion liegt, macht sich eine Reduktion der Schichtdicke nicht so stark bemerkbar wie beim DCM.

Die Ergebnisse lassen auf eine Ablationsschwelle von ungefähr 10 mJ/cm^2 schließen.

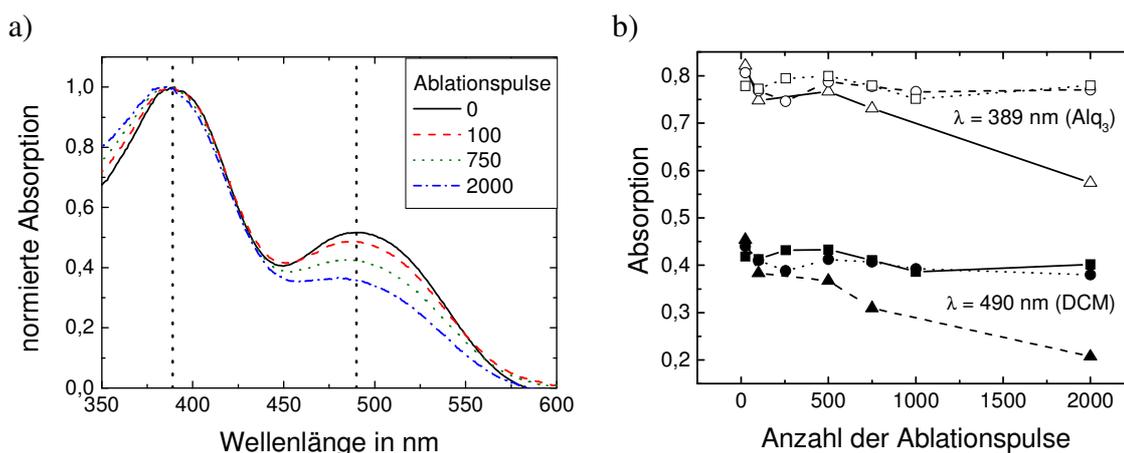


Bild 7.3: a) Verschiedene normierte Absorptionsspektren bei verschiedener Anzahl von Ablationspulsen. Die Ablationsleistung pro Puls betrug jeweils 13 mJ/cm^2 . Die gestrichelten vertikalen Linien geben die Wellenlänge der Absorptionsmaxima von Alq_3 (389 nm) und DCM (499 nm) an. b) Homogene Ablation 300 nm dicker Alq_3 :DCM-Schichten. Die Koeffizienten der Absorptionsmaxima für Alq_3 (offene Symbole) und DCM (ausgefüllte Symbole) sind aufgetragen gegen die Anzahl der Ablationspulse für Ablationsdosen von 5 mJ/cm^2 (Quadrate), 7 mJ/cm^2 (Kreise) und 13 mJ/cm^2 (Dreiecke).

Bedenkt man, dass bei vollständiger Interferenz die Maxima die doppelte Intensität im Gegensatz zur gemittelten Leistung aufweisen, sollte für die Interferenzablation eine durchschnittliche Leistung von ungefähr 5 mJ/cm^2 ausreichen, um lokal zu ablatieren. Eine Schwelle von 10 mJ/cm steht auch mit den Ergebnissen in [60] in Übereinstimmung.

7.4 Interferenzablation

Für das Interferenzmuster wurde eine Gitterperiode Λ von 399 nm gewählt. Diese führt bei Annahme eines effektiven Brechungsindex von $1,62$ für das Material $\text{Alq}_3\text{:DCM}$ zu einem Laser 2. Ordnung, welcher bei ungefähr 646 nm emittiert. Dies deckt sich mit der ASE-Wellenlänge, welche, im Gegensatz zu den anderen in dieser Arbeit verwendeten Schichten, bei ungefähr 646 nm liegt. Die Verschiebung ins langwellige Spektrum kommt aufgrund der höheren DCM-Konzentration von 5 mol\% zustande und beruht auf veränderten Parametern der Aufdampfanlage. Die Laserschwelle sollte dadurch allerdings nur gering beeinflusst werden [11]. Da es sich um einen Laser 2. Ordnung handelt, findet die Rückkopplung durch Bragg-Reflexionen 2. Ordnung und eine senkrechte Auskopplung in 1. Ordnung statt.

7.4.1 Homogenität der Ablation

Der ablatierte Bereich auf der Probe besitzt eine kreisförmige Fläche mit einem Durchmesser von $3,6 \text{ mm}$. Dieses Gebiet wurde aufgrund des inhomogenen Laserprofils nicht gleichmäßig bestrahlt. Dies spiegelt sich auch in den ortsaufgelösten Messungen der Proben wieder. In Bild 7.4 a) ist das ortsaufgelöste PL-Intensitätsprofil einer ablatierten Fläche abgebildet. Das Gebiet wurde zeilenweise in einem Abstand von $100 \mu\text{m}$ abgerastert. Die Anregungsfläche entspricht vereinfacht betrachtet einem Kreis mit einem Durchmesser von $200 \mu\text{m}$. Dargestellt wird die über das gesamte Spektrum integrierte Intensität in Abhängigkeit vom Anregungsort. Die roten Bereiche sind Gebiete mit hoher Intensität und die blauen mit niedriger.

In der Mitte ist ein blauer Kreis mit einem Durchmesser von circa 3 mm erkennbar. Dieser Bereich entspricht dem auf der Probe am stärksten ablatierten Gebiet. Die unterschiedlichen Intensitäten innerhalb dieses Kreises spiegeln die Inhomogenität des Laserprofils wider. Dieses hat die Form einer Sichel plus einem Punkt, was sich durch die dunkelblauen Stellen widergespiegelt. Betrachtet man die Spektren an den unterschiedlichen Punkten, wird sichtbar, dass die blauen Bereiche nur eine geringe Photolumineszenz aufweisen, wohingegen die dunkelroten Gebiete ein Laserspektrum zeigen.

Diese inhomogene Ablation kann bei allen Proben beobachtet werden. Sie erschwert die systematische Untersuchung und Deutung der Ergebnisse. Bei den Messungen der Gittereffizienz wird aufgrund des nicht fokussierten HeNe-Laserstrahls über eine Fläche von circa 2 mm gemittelt, was die Ortsabhängigkeit der Messung verringert. Für die

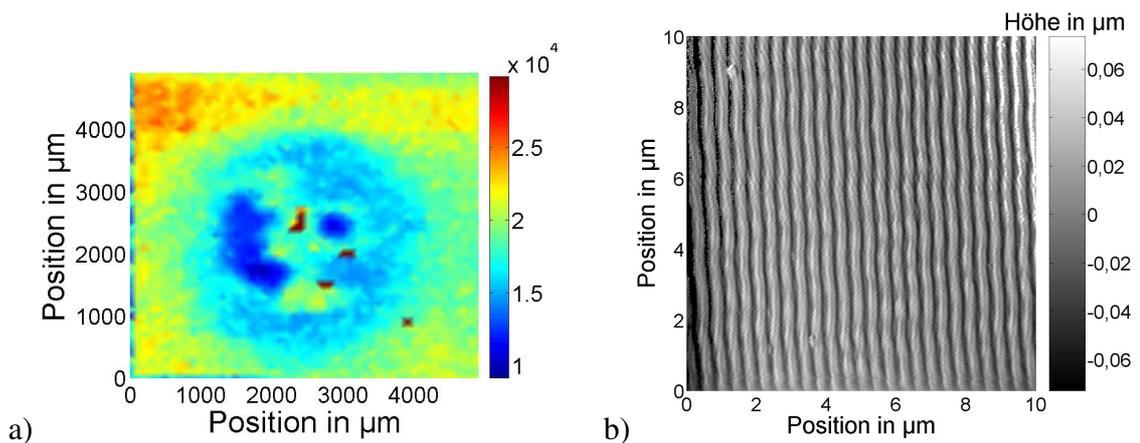


Bild 7.4: a) Ortsaufgelöstes PL-Intensitätsprofil einer ablatierten Fläche (500 Pulse; $7,6 \text{ mJ/cm}^2$). Die Fläche wurde mit einer Schrittweite von $100 \text{ }\mu\text{m}$, bei einer Anregungsfläche von ungefähr $200 \text{ }\mu\text{m}$ Durchmesser und einer Pumpleistung von $50 \text{ }\mu\text{J/cm}^2$ abgerastert.
 b) AFM-Aufnahme einer ablatierten Probe (500 Pulse; 5 mJ/cm^2).

Bestimmungen der Laserschwelle wurde jedes Feld, wie oben beschrieben, abgerastert. Dabei lag die Pumpleistung so hoch, dass nur die Gebiete mit den niedrigsten Schwellen Lasertätigkeit zeigten. Die exakte Bestimmung der Laserschwelle erfolgte danach an diesen Probenstellen.

Aufnahmen mit einem Rasterkraftmikroskop (AFM, engl. atomic force microscope) zeigten aufgrund der Inhomogenität unterschiedliche Oberflächenprofile. In Bild 7.4 b) ist zum Beispiel eine AFM-Aufnahme von einer untersuchten Stelle abgebildet, welche eine niedrige Laserschwelle aufwies.

Wie man sieht, sind die Gitterlinien nicht perfekt gerade. Betrachtet man das Bild aus etwas weiterer Entfernung, kann man ein Muster erkennen. Die Ursache hierfür ist nicht eindeutig zu bestimmen. Es kann sich zum Beispiel um Effekte wie Staupartikel auf den optischen Elementen im Strahlengang handeln, welche das Interferenzmuster stören. Auch kommen Verspannungen des Substrates in Betracht [63].

Ansonsten ist der Aufnahme zu entnehmen, dass der dargestellte Bereich frei von Kontamination ist. Dies ist ein wichtiges Kriterium für die prinzipielle Eignung eines Materials für die Laserablation, wie oben aufgeführt wurde.

7.4.2 Gittereffizienzen

An den Proben wurden neben den Lasereigenschaften auch die Gittereffizienzen bestimmt. Die Gittereffizienzen stehen in direktem Zusammenhang mit der Gittertiefe, vorausgesetzt die Gitterform variiert nicht stark (s. Abschnitt 5.2). Die im Folgenden vorgestellten Ergebnisse basieren auf Proben mit einer Schichtdicke von 175 nm Alq_3 :DCM-Schicht. Dasselbe Verhalten war aber auch bei dickeren Proben beobachtbar.

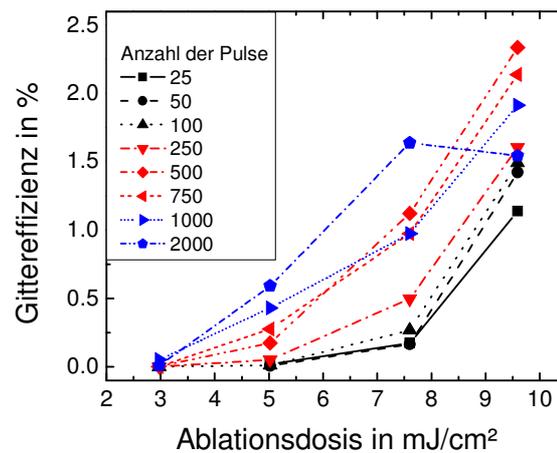


Bild 7.5: Gittereffizienz in Abhängigkeit von der Ablationsdosis. Die verschiedenen Linien sind unterschiedlichen Anzahlen an Ablationspulsen zugeordnet.

In Bild 7.5 ist die Gittereffizienz in Abhängigkeit von den Ablationsparametern dargestellt. Für Leistungsdichten von 3 mJ/cm^2 konnten keine nennenswerten Effizienzen gemessen werden. Auch bei 12500 Pulse beträgt die Gittereffizienz nur $0,15 \%$ (nicht im Bild gezeigt). Bei Dosen zwischen 5 mJ/cm^2 und 10 mJ/cm^2 ist der Einfluss der Effizienz in Abhängigkeit von der Anzahl der Pulse deutlich erkennbar. Dies steht in Einklang mit den Ergebnissen aus dem Abschnitt über homogene Ablation. Wie vermutet, existiert lokale Ablation bereits bei ungefähr 50% der Leistungsdosis, die für die homogene Belichtung notwendig ist.

Bei 2000 Pulsen erhält man einen nicht monoton steigenden Zusammenhang. Die Gittereffizienz steigt ab $7,6 \text{ mJ/cm}^2$ nicht mehr, sondern sinkt wieder. Dies kann zurückgeführt werden auf Schädigungen des Gitters durch abgelagertes Material und durch Ablation in den Dunkelzonen des Interferenzmusters, wie es zum Beispiel in [59] beschrieben wird.

7.4.3 Charakterisierung der Laser

Lasertätigkeit konnte bei einer Vielzahl von interferenzablatierten Stellen festgestellt werden. Ein typisches Laserspektrum ist für einen hergestellten Laserresonator bei 500 Pulsen und einer Leistungsdichte pro Puls von 5 mJ/cm^2 in Bild 7.6 a) dargestellt. Die volle Halbwertsbreite (FWHM) beträgt $0,3 \text{ nm}$.

Bei einer Leistungsdichte von 5 mJ/cm^2 pro Puls ist in Bild 7.6 b) die Laserschwelle für unterschiedliche Anzahlen an Pulsen aufgetragen. Jeder Messwert entspricht einem anderen Ort auf der Probe. Die niedrigsten Laserschwellen von circa $30 \mu\text{J/cm}^2$ können sowohl bei niedrigen Pulszahlen als auch bei 750 Pulsen beobachtet werden. Die dazwischen liegenden Laserschwellen weisen um bis zu 50% höhere Werte auf. Dieses Verhalten verwundert, da es unwahrscheinlich ist, dass ein schlechtes Gitter beim weiteren Ablatieren wieder besser wird. Da die Bereiche mit den besten Schwellen,

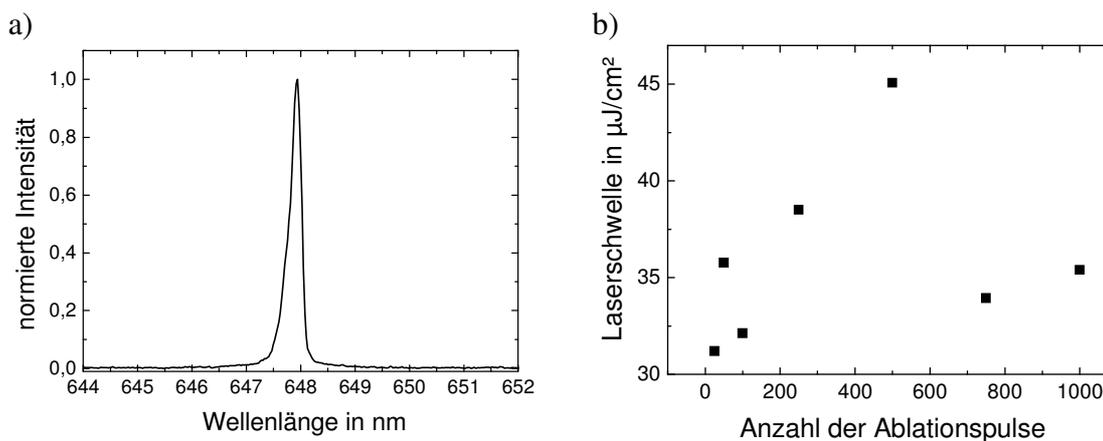


Bild 7.6: a) Laserspektrum mit einer FWHM von 0,3 nm. Das Gitter wurde bei $5 \text{ mJ}/\text{cm}^2$ mit 500 Pulsen ablatiert.

b) Abhängigkeit der Laserschwelle von der Anzahl der Ablationspulse. Die Ablationsdosis betrug $5 \text{ mJ}/\text{cm}^2$.

teilweise nur im Bereich von $200 \mu\text{m} \times 200 \mu\text{m}$ liegen, können die Schwankungen auf die, bereits weiter oben behandelte, inhomogene Ablation zurückgeführt werden.

7.4.4 Zusammenfassung und Ausblick

In den vorherigen Abschnitten wurde demonstriert, dass es möglich ist, Oberflächen-gitter mithilfe der Laserinterferenzablation direkt in eine $\text{Alq}_3\text{:DCM}$ -Schicht zu schreiben. Zudem wurde das Ablationsverhalten von $\text{Alq}_3\text{:DCM}$ mithilfe von homogenen und interferenzlithografischen Experimenten untersucht. Die hier gewonnene Schwelle von $10 \text{ mJ}/\text{cm}^2$ für die homogene Ablation ist konsistent mit der von $5 \text{ mJ}/\text{cm}^2$ für die interferenzlithografisch erzeugten Gitter.

Die Laserschwelle von $30 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ liegt höher als mit alternativen Verfahren hergestellten und in dieser Arbeit diskutierten Lasern. Ein zentraler Parameter zur Optimierung stellt die Verbesserung des Ablationsprofils dar. Hier war der Laser nicht optimal auf die Frequenzverdreifung abgestimmt. Zudem kann ein Raumfilter das Profil weiter verbessern. Durch die hohen Leistungsdichten müsste dieser Raumfilter im Vakuum stehen, da ansonsten im Laserfokus ein Plasma gezündet wird. Solche Raumfilter sind aber kommerziell erhältlich.

Nach der Verbesserung des Ablationsprofils gibt es zahlreiche weitere Untersuchungsrichtungen, welche interessant sind. So ist die Erzeugung von zweidimensionalen Strukturen ein naheliegender Schritt. Für durchstimmbare Laser ist die Erzeugung von Gittern mit sich kontinuierlich ändernder Gitterperiode attraktiv. Dies kann durch asymmetrische Strahlengänge der interferierenden Strahlen realisiert werden.

Während der Herstellung der Gitter wurde teilweise beobachtet, dass die Substrate eine schmale, rote Linie emittierten. Da die Ablationswellenlänge auch zum Anregen der Lasersubstrate genutzt wurde, ist es denkbar, dass es sich dabei um Lasertätigkeit handelte. Diese Emission während des Herstellungsprozesses könnte für eine

systematische Untersuchung der Ablation genutzt werden. Zudem böte sich durch eine zeitgleiche Kontrolle die Möglichkeit, gezielt den Ablationsprozess beim Erreichen der gewünschten Parameter zu beenden und so Herstellungsschwankungen zu minimieren. Da die Anregung mit einem Interferenzmuster geschieht, ist davon auszugehen, eine gewinnmodulierte Lasertätigkeit anstatt einer indexmodulierten vorliegen zu haben. Falls die Abweichungen stören, kann ein zeitlich versetzter homogener Anregungspuls genutzt werden.

Neben den Lasereigenschaften können auch die Gittereigenschaften während der Ablation gemessen werden [40]. Dies kann man auch nutzen, wenn die Gitter nicht für Laser eingesetzt werden sollen. So bieten sich zum Beispiel die Gitter auch für die Modifizierung der Auskopplung von (organischen) Leuchtdioden an.

8 Photonische-Kristall-Resonatoren

In diesem Kapitel werden zweidimensionale Strukturen auf Basis quadratischer und hexagonaler Gitter diskutiert. Ziel war es unter anderem, den Einfluss der Variation des Gittersäulendurchmessers auf die Lasereigenschaften zu untersuchen und den optimalen Radius für eine Anwendung zu bestimmen. Optimal sind neben einer niedrigen Laserschwelle hohe Auskopplungsleistungen bei oberflächenemittierenden Lasern. Darüber hinaus wurde bei den quadratischen Gittern ein spezielles Fernfeld näher untersucht, um die dahinterliegenden Mechanismen zu verstehen.

8.1 Quadratische Gitter

Ursprünglich wurden vorwiegend eindimensionale DFB-Gitter als Resonatoren für organische Halbleiterlaser verwendet. Diese waren bereits im Bereich der anorganischen Laser gut verstanden. Im Zuge der Forschungsaktivitäten auf dem neu geschaffenen Gebiet der „Photonischen Kristalle“, welches sich mit mehrdimensionalen periodischen Strukturen beschäftigt (s. Abschnitt 3.3.2), wurde das Interesse auf zweidimensionale periodische Strukturen gelenkt. Hier ist ein häufig untersuchter Gittertyp das quadratische Gitter, da es sich mit Elektronenstahl- und Laserinterferenzlithografie, im Vergleich zu hexagonalen Gittern, relativ einfach herstellen lässt. Zudem bieten sie eine effektivere Möglichkeit linear polarisierte Laser zu realisieren [24].

Dieses Kapitel befasst sich mit den Eigenschaften organischer Halbleiterlaser auf der Basis quadratischer Gitter. Neben dem Kapitel über den Stand der Technik auf diesem Gebiet wird zum einen die Abhängigkeit der Füllfaktoren auf die Laserschwelle und -effizienz vorgestellt. Die Füllfaktoren wurden systematisch variiert, um die Laserparameter zu optimieren. Zum anderen wird auf die Ergebnisse der Untersuchungen des Einflusses der Anregungsfläche eingegangen. Die Ergebnisse sind in 1. und 2. Ordnung-Laser aufgeteilt.

Bei den Untersuchungen konnte ein Fernfeld beobachtet werden, über welches in der einschlägigen Literatur bisher nicht berichtet wurde. Dieses Fernfeld wird in Abschnitt 8.1.4 genau beschrieben und interpretiert.

8.1.1 Stand der Technik

Es existieren mehrere Veröffentlichungen zu Lasern auf Basis quadratischer Gitterresonatoren. Diese demonstrieren eindrucksvoll, dass durch die zweite Rückkopplungsrichtung sowohl die Laserschwelle als auch die Strahldivergenz bei 2. Ordnung-Lasern reduziert werden können ([8], [9]). Zudem traten zweidimensionale Rückkopplungsmechanismen auf, welche über eine Kopplung von eindimensionalen gegenläufigen

Wellen hinausgehen. Dies macht sich in kreisförmige ([8], [64]) oder ringförmigen ([9], [65], [66]) Fernfeldern bemerkbar.

Bei wesentlich höheren Pumpenergien tauchen zusätzlich die von den linearen Gittern bekannten Fächer (s. Seite 140) und weitere zweidimensionale Moden auf. So konnte ein Fernfeld in der Form eines ‚x‘ beobachtet und durch Rückkopplung an den $\{11\}_L$ -Bragg-Linien und der Breite des spektralen Gewinns erklärt werden [8].

Wie in Abschnitt 3.3.4 beschrieben wird, ist das Fernfeld von der Form der Gitterpunkte und dem Band, auf dem die Lasertätigkeit stattfindet, abhängig. Für anorganische Laser mit einem quadratischen Gitterresonator konnte gezeigt werden, dass ringförmige Moden bei Gittersäulen aufgrund ihrer Rotationssymmetrie auftreten. Dreieckige Gitterpunkte führten dagegen zu kreisförmigen Moden [23]. In [24] wurden elliptische Säulen verwendet. Es zeigte sich eine Aufspaltung der relevanten Bänder und eine lineare Polarisierung des Fernfeldes.

Bei der Polarisierung ringförmiger Moden muss zusätzlich zwischen TE- und TM-ähnlichen Moden unterscheiden werden [23]. Die TE-ähnlichen Moden weisen eine tangentielle Polarisierung auf. Dies macht sich bei polarisationsabhängigen Messungen des Fernfeldes dadurch bemerkbar, dass aus der Ringmode zwei Höcker stehen bleiben, welche parallel zum Polarisator ausgerichtet sind. Bei TM-ähnlichen Moden bleiben die Höcker hingegen senkrecht zum Polarisator stehen (s. Abschnitt 3.3.4).

Die veröffentlichten Resonatoren sind im Wesentlichen so ausgelegt, dass als Rückkopplungsrichtung Bragg-Reflexionen in Γ -X Richtung genutzt werden können. Zur ebenfalls möglichen Γ -M Richtung existiert bisher nur eine Veröffentlichung für organische Laser [67].

8.1.2 Experimente

Die in diesem Abschnitt behandelten Substrate basieren auf in SiO_2 -Schichten nass-chemisch geätzte Strukturen. Die genaue Herstellung wurde in Abschnitt 4.1.2 beschrieben. Die verwendeten Strukturen sind in Bild 8.1 a) und b) zu sehen. Bild 8.1 a) zeigt eine schematische Seitenansicht der gesamten Laserstruktur. Eine Sicht auf die SiO_2 -Substrate bietet die REM-Aufnahme in Bild 8.1 b). Es handelt sich um SiO_2 -Säulen, welche quadratisch mit der Periode Λ angeordnet sind. Die Höhe h der Säulen liegt bei 70 nm, während der Durchmesser w variiert wurde. Ziel war es, durch die Variation die optimalen Laserparameter für quadratische Gitter mit Säulen zu ermitteln. So lag ein Fokus auf einer niedrigen Laserschwelle und einem hohen differentiellen Wirkungsgrad.

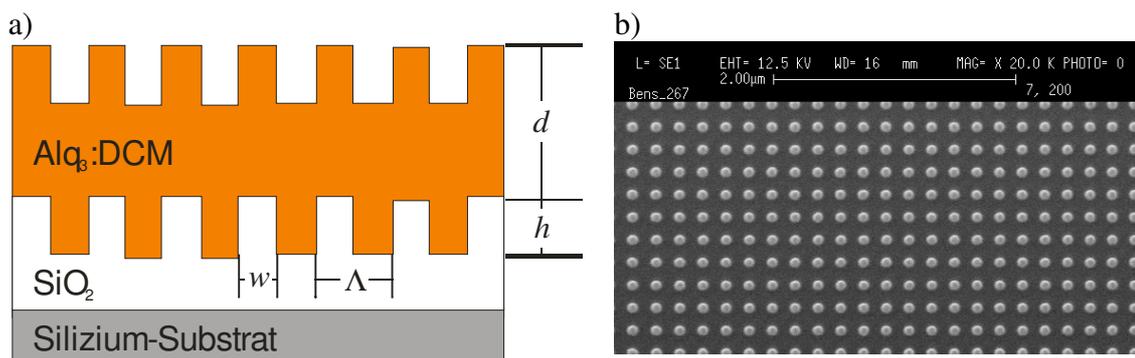


Bild 8.1: a) Schema der Laserstruktur. Die einzelnen Größen werden im Text definiert.
b) REM-Aufnahme eines Resonatorfeldes 1. Ordnung [69].

Die einzelnen Resonatorflächen sind $320 \mu\text{m} \times 320 \mu\text{m}$ groß. Als Perioden wurden 400 nm für die 2. Ordnung-Resonatoren und 200 nm für die 1. Ordnung-Laser gewählt. Die Felder waren alle auf demselben Substrat in einem Abstand von 4 mm angebracht, was eine Vergleichbarkeit der aufgedampften Schicht garantiert. Die Laserschicht bestand aus Alq₃:DCM.

Systematisch wurden zwei Versuche mit unterschiedlichen Dicken der aktiven Schicht durchgeführt. Es handelt sich dabei um ein und dasselbe Substrat, welches zwischen den Versuchen gründlich gesäubert und erneut bedampft wurde. Um im folgenden Text die unterschiedlichen Versuche voneinander abzuheben, wird von $V280\text{nm}$ und $V350\text{nm}$ gesprochen. Die Schichtparameter zu den jeweiligen Versuchen sind:

	Alq ₃ :DCM Schichtdicke	ASE-Wellenlänge
V280nm	280 nm	627 nm
V350nm	350 nm	639 nm

In den folgenden Abschnitten wird bei den entsprechenden Ergebnissen immer auf den jeweils aktuellen Versuch verwiesen. In Abschnitt 8.1.4 über die Fernfelder beziehen sich die Aussagen auf den Versuch $V350\text{nm}$, sofern nicht explizit auf den Versuch $V280\text{nm}$ hingewiesen wird.

Bei der Variation der Anregungsfläche wurde von der größten Fläche aus gestartet und regelmäßig die Position überprüft bzw. mittig justiert. Die Anregungsfläche des Pump-lasers weist eine Ellipseform auf, dessen Fläche als Parameter angegeben wird. Die Durchmesser der beiden Hauptachsen stehen in runden Klammern optional hinter der Fläche.

8.1.3 Laserschwelennmessungen an quadratischen Gittern

Vereinfacht formuliert gibt die Gitterperiode eines Lasers die Laserwellenlänge und die potenziellen Abstrahlrichtungen vor. Quantitative Eigenschaften wie Aus- und Rückkopplungseffizienz werden dagegen von der Gitterform bestimmt.

Inwieweit der Säulenradius quadratischer Gitterresonatoren die quantitativen Lasereigenschaften ändert, wird im Folgenden für die 1. und 2. Ordnung-Laser diskutiert. Zusätzlich wird auch der Frage nachgegangen, welchen Einfluss die Anregungsfläche auf die Eigenschaften hat.

1. Ordnung-Laser

Bei den Resonatorstrukturen mit einer Periode von 200 nm handelt es sich um 1. Ordnung-Laser. Dies bedeutet in Anlehnung an das Bild der Gitterstreuung, dass die Rückkopplung in 1. Ordnung erfolgt und es keine Auskopplungsmöglichkeit aufgrund von Bragg-Streuung gibt. Ein Einfluss des Säulenradius auf die Laserschwelle wäre über die Rückkopplungseffizienz denkbar.

Bei extrem schwacher Rückkopplung könnte ein großer Teil des Lichtes aus dem Anregungsgebiet entweichen und als Resonatorverlust die Schwelle anheben. Insbesondere die kleinen Resonatorfelder könnten diesen Effekt begünstigen.

Die Untersuchungen weisen allerdings keine signifikante Änderung der Laserschwelle der ersten anschwingenden Mode in Abhängigkeit von den Säulenradien auf. So liegen die Schwellen bei circa $9 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ für den Versuch *V280nm* bzw. $5,5 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ für *V350nm* (s. Bild 8.2 a). Dies würde bedeuten, dass die Rückkopplungskoeffizienten bei den gewählten Säulenradien nicht stark variieren bzw. die Resonatorfelder groß genug gewählt wurden, um das aus dem Anregungsgebiet laufende Licht weitestgehend zurückzereflektieren.

Bild 8.2 b) zeigt die Abhängigkeit der Laserwellenlänge vom Säulenradius. Im Grafen sind auch Moden eingetragen, welche höhere Laserschwellen aufweisen, wodurch es mehrere Messpunkte zu einem Säulenradius geben kann. Die Wellenlänge selber nimmt mit steigendem Säulenradius leicht ab. Dies ist auf die Volumenzunahme der SiO_2 -Säulen zurückzuführen. Diese weisen einen geringeren Brechungsindex als das aktive Material auf, was zu einem kleineren effektiven Brechungsindex führt.

Zu jedem Säulenradius können bis zu vier Moden beobachtet werden. Dabei handelt es sich um zwei Doppelmoden, welche bis zu 6 nm auseinander liegen. Während die Doppelmoden mit ihrem geringen Abstand als ober- und unterhalb der Bandlücke anschwingende Moden erklärt werden können, gibt es bei den spektral weiter entfernten Moden zwei Erklärungsansätze. Zum einen könnte es sich um Gitterfehler handeln, zum anderen könnte auch eine TM-Mode anschwingen.

Eine lasernde TM-Mode würde aufgrund ihres geringeren effektiven Brechungsindex in das kurzwellige Spektrum verschoben werden. Bei einer Abschätzung der Brechungsindizes mithilfe der Bragg-Formel (3.6) erhält man eine Abweichung zwischen TE und TM-Mode von nur 0,016. In Wellenleitersimulationen liegt der Unterschied mit 0,05 allerdings erheblich höher.

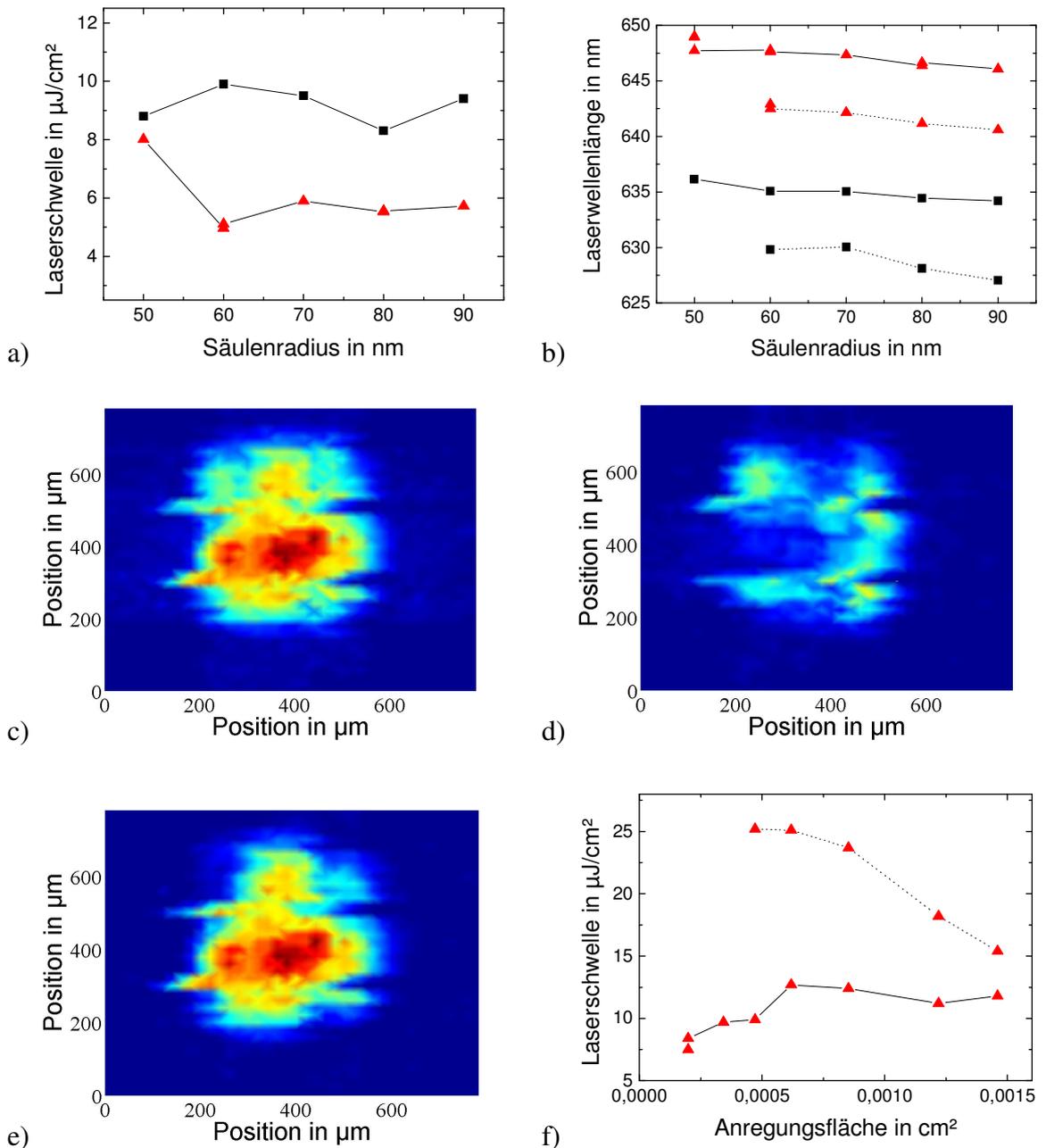


Bild 8.2: a) Laserschwelle und b) Laserwellenlänge in Abhängigkeit vom Säulenradius für den Versuch V280nm (schwarzes Quadrat) und V350nm (rotes Dreieck). Die Anregungsfläche betrug $0,000472 \text{ cm}^2$ ($275 \mu\text{m}$; $218 \mu\text{m}$). Bei den Schwellen wurden nur die als erstes anschwingenden Moden abgebildet.

c)-e) Ortsaufgelöste Messungen an einem Resonator mit 60 nm Säulenradius (V350nm). Neben dem (c) gesamten integrierten Spektrum ist noch das um $640,5 \text{ nm}$ (d) und das um $644,5 \text{ nm}$ (e) integrierte Spektrum abgebildet. Rote Bereiche entsprechen Gebieten mit starker Lasertätigkeit, blaue Bereiche Gebieten mit schwacher Lasertätigkeit. Die Farbskala wurde für alle drei Bilder gleich gewählt. Die Anregungsfläche betrug $75 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ bei einer Fläche von $0,0002 \text{ cm}^2$ ($180 \mu\text{m}$; $140 \mu\text{m}$) und die Schrittweite $20 \mu\text{m}$.

f) Laserschwelle in Abhängigkeit von der Anregungsfläche für einen Resonator mit 60 nm Säulenradius. Mehrere Messwerte für eine Fläche entsprechen spektral unterschiedlich anschwingenden Moden. Die langwelligeren anschwingenden Moden sind mit durchgezogenen Linien verbunden.

Für einen festen effektiven Brechungsindex berechnet man, dass schon ein Unterschied von 1,2 nm in der Gitterperiode ausreichen würde, um die Braggwellenlänge um 6 nm zu verschieben.

Untersuchung, in denen die Laserspektren in Abhängigkeit von der Anregungsposition betrachtet wurden, ergaben, dass die langwellige Doppelmode sich im Resonatorinneren konzentriert, während die kurzwellige Doppelmode verstärkt in der Peripherie zur Geltung kommt (s. Bild 8.2 c)-e).

Dieses Verhalten spiegelt sich auch in den Laserschwelmmessungen in Abhängigkeit von der Anregungsposition wieder. In Bild 8.2 f) sind Messwerte einer solchen Messung für einen Resonator mit 60 nm Säulenradius (*V280nm*) aufgetragen. Verschiedene Messwerte zu einer Anregungsfläche entsprechen den spektral unterschiedlich anschwingenden Moden, wobei die langwelligeren Moden immer die niedrigsten Schwellen aufweisen (durchgezogene Linie). Die lang- und kurzwelligen Moden verhalten sich gegenläufig. Während die Laserschwelmen für langwellige Moden zunächst steigen und dann konvergieren, fallen die Schwellen für die kurzwelligen Moden (gestrichelte Linien) monoton ab. Zudem fällt auf, dass erst ab einer Anregungsfläche von $0,00047 \text{ cm}^2$ ($275 \mu\text{m}$; $218 \mu\text{m}$) kurzwellige Moden erscheinen. Dies stimmt mit den Beobachtungen überein, dass sich die langwelligen Moden in der Mitte konzentrieren. Bei einer kleinen Anregungsfläche wird hauptsächlich diese Region gepumpt. Bei zunehmender Anregungsfläche kommen auch die äußeren Bereiche hinzu. Je größer die Fläche wird, desto größer wird der Anteil der Anregungsfläche im Randbereich in Bezug auf die Gesamtfläche. Dies erklärt den Rückgang der kurzwelligen Laserschwelle. Das Ansteigen der Schwelle der langwelligen Moden kann darauf zurückgeführt werden, dass ein Teil der Energie in die kurzwellige Mode geht.

2. Ordnung-Laser

Wie bei den 1. Ordnung-Resonatoren wurden auch für die 2. Ordnung-Resonatoren der Radius der Säulen und die Anregungsfläche systematisch variiert. Dabei konnte beobachtet werden, dass unterhalb einer Fläche von $0,0002 \text{ cm}^2$ ($180 \mu\text{m}$; $140 \mu\text{m}$) sowohl die Leistungsdichten als auch die Pulsleistungen der Laserschwelle wieder stiegen. Bei den teilweise verwendeten Leistungsdichten von über $200 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ konnte Degradation, in Form eines schnellen Abklingens der Lasertätigkeit, beobachtet werden. In einem Bereich von $0,00034 \text{ cm}^2$ ($236 \mu\text{m}$; $185 \mu\text{m}$) bis $0,0085 \text{ cm}^2$ ($359 \mu\text{m}$; $301 \mu\text{m}$) kommt es teilweise zur Konvergenz der Laserschwelle. Ein direkter Zusammenhang mit den Säulenradien wird nicht beobachtet. Bei Radien von 160 nm und 80 nm kann zum Beispiel nur eine schwache Konvergenz beobachtet werden. In Bild 8.3 a) sind exemplarisch die beiden Verhaltensweisen für die Säulenradien von 60 nm und 80 nm dargestellt.

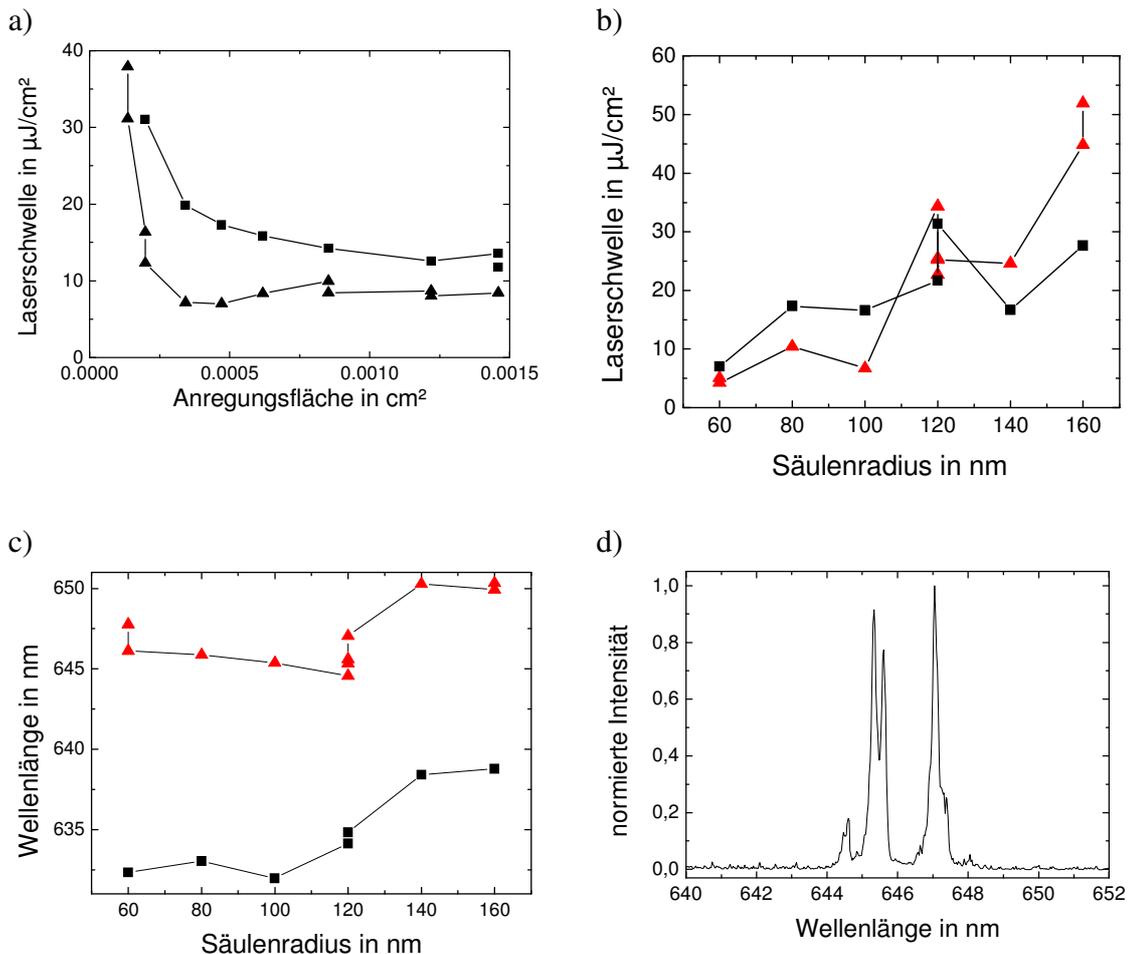


Bild 8.3: a) Laserschwelle in Abhängigkeit von der Anregungsfläche für Säulenradien von 60 nm (Dreiecke) und 80 nm (Quadrate). Es handelt sich um eine Messung des Versuches V280nm. b) Laserschwelle in Abhängigkeit vom Säulenradius bei einer Anregungsfläche von 0,00047 cm² für die Versuche V280nm (schwarze Quadrate) und V350nm (rote Dreiecke). c) Änderung der Laserwellenlänge in Abhängigkeit vom Säulenradius für die Versuche V280nm (schwarze Quadrate) und V350nm (rote Dreiecke) d) Laserspektrum für einen Säulenradius von 120 nm (V350nm)

Das unterschiedliche Konvergenzverhalten schlägt sich bei dem Vergleich der Laserschwel­len in Abhängigkeit von den Säulenradien nur leicht durch. Tendenziell steigt die Laserschwelle vom kleinsten zum größten Radius. In Bild 8.3 b) ist dies am Beispiel einer Anregungsfläche von 0,00047 cm² dargestellt. Wie schon bei den 1. Ordnung-Lasern festgestellt wurde, ist die Laserwellenlänge beim Versuch V350nm ins langwellige Spektrum verschoben. Im Gegensatz dazu fällt die Wellenlänge mit steigendem Säulenradius nicht monoton ab, sondern springt bei einem Radius von 120 nm ins Langwellige (s. Bild 8.3 c). Dieses Verhalten weicht von den in Abschnitt 8.1.2 und 13.7 beobachteten Ergebnissen ab. Hier fällt, wie bei den 1. Ordnung-Lasern, die Wellenlänge monoton ab. Der Grund für dieses Verhalten ist unklar. Da es bei den Versuchen V280nm und V350nm auftritt, kann die aktive Schicht vernachlässigt werden. Ein Zusammenhang mit der Resonatorgeometrie ist deshalb wahrscheinlicher.

In Bild 8.3 d) ist das Laserspektrum für einen Säulenradius von 120 nm dargestellt. Hier sind mehrere Emissionswellenlängen zu erkennen, welche auf die vier unterschiedlichen Bänder in Γ -X-Richtung zurückgeführt werden können. Der genaue Verlauf der Bandstruktur wird in Abschnitt 13.5 besprochen. Das Anspringen mehrerer Wellenlängen konnte auch bei den hexagonalen Strukturen beobachtet werden (s. Abschnitt 13.7). Hier tritt es ebenfalls erst bei größeren Säulenradien in Erscheinung.

Meistens wird nur das Anspringen einer Mode beobachtet. Dies ist eine direkte Folge der unterschiedlichen Resonatorgüten Q der einzelnen Bänder [68]. Im Umkehrschluss würde dies bedeuten, dass sich die Güten der Bänder ändern bzw. angleichen.

Laserkennlinien

Beim Versuch *V280nm* wurden für die 2. Ordnung-Laser neben den Laserschwellen auch die differentiellen Wirkungsgrade gemessen (s. Abschnitt 5.1.4). Die ermittelten Daten sind in Bild 8.4 a) und b) dargestellt. Man erkennt, dass für einen Säulenradius von 80 nm sowohl der größte differentielle Wirkungsgrad als auch die niedrigste Schwelle erzielt wurde. Abweichend von den zuvor dargestellten Ergebnissen liegt die Schwelle für einen Säulenradius von 60 nm etwas höher. Dies hängt damit zusammen, dass die Kennlinien bis zu 10 Mal oberhalb der Laserschwelle detektiert wurden, wodurch es zu Abweichungen kommen kann. Der differentielle Wirkungsgrad von 0,016 bzw. 1,6 % liegt unterhalb veröffentlichter Werte von 5,8 % [61], 6,8 % [65] und 7,8 % [9]. Allerdings wurde, bei den veröffentlichten Werten, die Ausgangsleistung in beide Richtungen senkrecht zum Wellenleiter addiert. Aufgrund des in der Arbeit verwendeten nicht transparenten Si-Wafers ist dies allerdings nicht möglich. Ob und wie viel Laserlicht am Silizium-Wafer reflektiert und durch das zweidimensionale Gitter und der aktiven Schicht transmittiert wird, ist schwer zu beantworten, da vergleichbare transparente Substrate fehlen.

Die größten an den Proben emittierten Pulsleistungen lagen bei 1,2 nJ, wobei noch

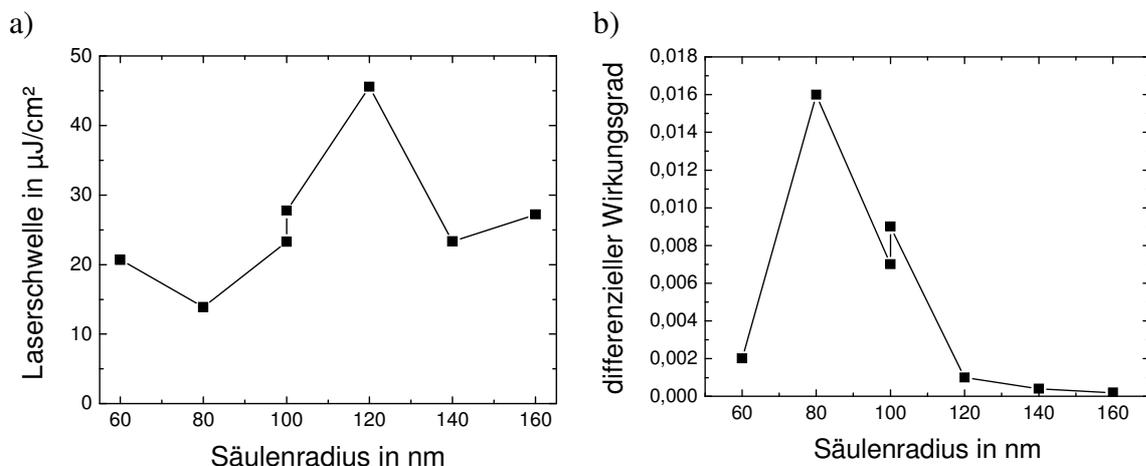


Bild 8.4: a) Laserschwelle und b) differentieller Wirkungsgrad in Abhängigkeit vom Säulenradius (*V280nm*). Für den Säulenradius von 100 nm lagen zwei Messungen vor. Die Anregungsfläche betrug $0,00146 \text{ cm}^2$ ($525 \mu\text{m}$; $356 \mu\text{m}$).

keine Degradation auf Zeitskalen bis zu einer Minute beobachtet wurde.

8.1.4 Fernfelder

Für die Nutzung des Laserlichtes ist bei 2. Ordnung-Lasern das Fernfeld von besonderem Interesse. Am Anfang dieses Kapitels wurden die bisher beobachteten und veröffentlichten Fernfelder für quadratische Resonatoren bereits beschrieben. Die beobachteten Fernfelder konnten mithilfe von Simulationen oder von Bragg-Streuung erklärt werden.

Die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Untersuchungen zeigten ein Fernfeld, welches von den bisher veröffentlichten abweicht. Es handelt sich um vier Laserpunkte, welche sich an den Enden eines ‚+‘-Zeichen befinden (s. Bild 8.5). In den folgenden Abschnitten soll die Entstehung dieses Fernfeldes erläutert werden. Es wird gezeigt, dass ein Energieübertrag von der in der Ebene lasernden TE-Mode auf eine leicht schräg auskoppelnde TM-Mode für dieses Verhalten verantwortlich ist. Zunächst erfolgt eine Beschreibung der Beugungsmechanismen in zweidimensionalen periodischen Resonatoren, ehe die Fernfelder unterhalb der Laserschwelle mithilfe der sogenannten Kikuchi-Linien gedeutet werden. Sie zeigen, dass sich zwei Moden im Wellenleiter ausbreiten und erlauben die Bestimmungen der effektiven Brechungsindizes. Die gewonnenen Daten fließen anschließend in die Erklärung der Fernfelder oberhalb der Laserschwelle ein und werden auf Basis von Bragg-Streuung und Modenkopplung erklärt. Die Ergebnisse werden im Anschluss, mit weiteren Untersuchungen der Fernfelder untermauert.

Beugung in zwei Dimensionen

Ein aus der Festkörper- und Oberflächenphysik bekanntes Vorgehen bei Streuung oder Beugung an periodischen Strukturen ist die grafische Behandlung des Problems im Impulsraum, welche nun für zweidimensionale periodische Gitter vorgestellt wird. Für eine ausführliche Darstellung des Konzeptes sei auf die einschlägige Standardliteratur

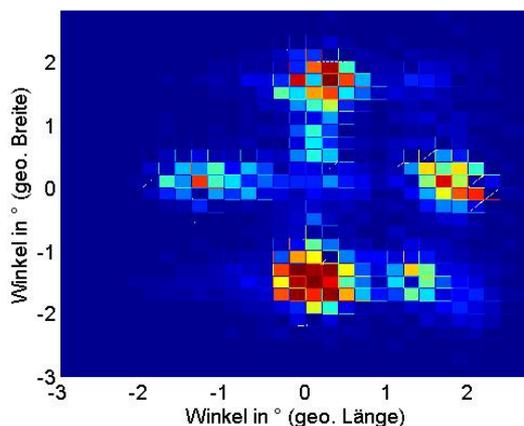


Bild 8.5: Fernfeldaufnahmen eines Lasers mit quadratischem Resonator bei 646,4 nm und einer spektralen Auflösung von 1 nm.

der Festkörper- und Oberflächenphysik verwiesen.

Im weiteren Verlauf des Kapitels wird die im Folgenden vorgestellte Herangehensweise intensiv genutzt. Sie bietet eine einfache Möglichkeit potenzielle Rückkopplungs- und Auskopplungsrichtungen zu bestimmen und anschaulich darzustellen.

Die Reduktion von drei auf zwei Raumrichtungen mit periodischer Störung hat zur Konsequenz, dass das reziproke Gitter aus Säulen anstatt Punkten besteht und die Bragg-Ebenen zu Linien werden. Dies trägt der Tatsache Rechnung, dass es in eine Richtung keine Streuung aufgrund von periodischen Störungen gibt.

Im Folgenden handelt es sich bei \mathbf{k}_0 um den Wellenvektor der einfallenden Welle und bei \mathbf{k} um den der gestreuten Welle. Erscheinen die Größen nicht fett gedruckt, ist wie üblich der Betrag des Vektors gemeint. Des Weiteren reduzieren sich die Miller'schen Indizes von drei auf zwei, wobei (hk) eine spezielle Richtung und $\{hk\}$ für die Sammlung aller äquivalenten Richtungen steht. So steht zum Beispiel $\{10\}$ für (10) , (01) , $(\bar{1}0)$ und $(0\bar{1})$. Die Gitterpunkte bzw. -säulen werden ohne Klammern gekennzeichnet. Der vom Nullpunkt zur Gittersäule mn verlaufende Gittervektor wird über Indizes gekennzeichnet: \mathbf{g}_{mn} . Die Sammlung äquivalenter Vektoren wird ebenfalls mit geschweiften Klammern symbolisiert: $\{\mathbf{g}_{mn}\}$. Die zu einem Gittervektor gehörige Bragg-Linie erhält den tief gestellten Index L . Bei $(10)_L$ handelt es sich also um die Bragg-Linie, welche zum Gittervektor \mathbf{g}_{10} gehört.

Die Basisvektoren \mathbf{G}_j im Impulsraum sind über die N Vektoren \mathbf{a}_i der Basis im Ortsraum definiert:

$$\mathbf{a}_i \cdot \mathbf{G}_j = 2\pi\delta_{i,j} \quad \forall i, j \in [1, N] \quad (8.24)$$

Bei $\delta_{i,j}$ handelt es sich um das Kronecker-Symbol.

Bei einer elastischen Streuung wird die Energieerhaltung durch die Bedingung $k_0^2 = k^2$ gewährleistet. Die Impulserhaltung in einem periodischen Medium fordert zusätzlich, dass der Unterschied zwischen den beiden Wellenvektoren genau einem reziproken Gittervektor entspricht:

$$\mathbf{k}_0 - \mathbf{k} = \mathbf{g} \quad (8.25)$$

Durch die Kombination beider Bedingungen erhält man die Gleichung

$$2\mathbf{k}_0 \cdot \mathbf{g} - g^2 = 0 \quad (8.26)$$

und weiter umgeformt die Gleichung

$$\mathbf{k}_0 \cdot \frac{\mathbf{g}}{2} = \left(\frac{g}{2}\right)^2. \quad (8.27)$$

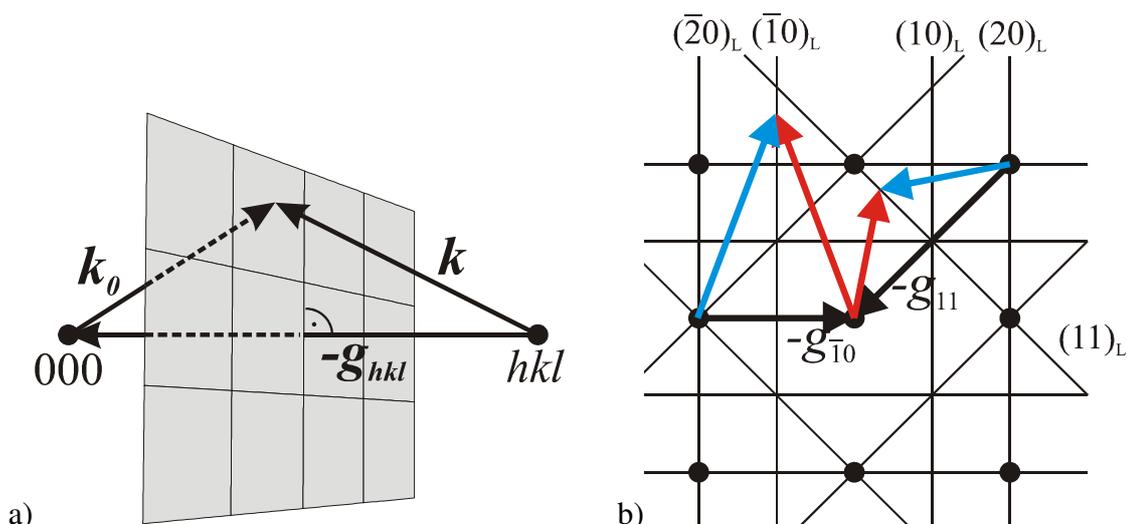


Bild 8.6: a) Konstruktion einer Brillouinzone in drei Dimensionen. Jeder Vektor \mathbf{k}_0 , der im Punkt 000 startet und auf dieser Zone (graue Ebene) endet, kann in einen Vektor \mathbf{k} reflektiert werden. b) Bragglinien eines quadratischen Gitters und zweier exemplarischer Bragg-Reflexionen. Die einfallende Welle ist rot und die reflektierte Welle blau gezeichnet.

Dies ist die mathematische Beschreibung der sogenannten Brillouinzone-Konstruktion, welche in Bild 8.6 a) grafisch für eine Zone in drei Dimensionen dargestellt ist. Dabei wird, von einem beliebigen Punkt 0 aus, eine Verbindungslinie zu allen anderen Punkten des reziproken Gitters gezogen. Die Verbindungslinie wird mittig mit einer senkrecht dazu stehenden Ebene geteilt. Diese Ebene wird auch als Bragg-Ebene bezeichnet.

Es sei darauf hingewiesen, dass andere Konventionen in Formel (8.25) auf der rechten Seite den negativen Gittervektor $-\mathbf{g}$ verwenden, wodurch die zugehörigen Konstruktionen teilweise in der Richtung des Gittervektors abweichen. Die Physik dahinter ändert sich dadurch natürlich nicht.

Nur Licht, dessen Wellenvektor \mathbf{k}_0 von 0 aufgetragen auf diese Ebene trifft, wird in einen Vektor \mathbf{k} gestreut. Die Differenz $\mathbf{k}_0 - \mathbf{k}$ entspricht dann genau dem negativen Gittervektor \mathbf{g} , dessen Mittelsenkrechte in der Ebene liegt.

Das Konzept der Bragg-Ebenen ist in Bild 8.6 b) für ein zweidimensionales quadratisches Gitter (schwarze Punkte) dargestellt. Es sind exemplarisch zwei Beugungen am Gitter eingezeichnet, wobei die Gittervektoren \mathbf{g}_{hk} als schwarze Pfeile, die einfallenden Vektoren als rote Pfeile und die gestreuten Vektoren als blaue Pfeile dargestellt werden. Alle Bragg-Linien sind als dünne schwarze Linien abgebildet.

Für zweidimensionale Gitter besteht der reziproke Raum wie oben erwähnt eigentlich nicht mehr aus Punkten, sondern aus Säulen. Betrachtet man jedoch nur Streuprozesse in einer Ebene, kann man weiterhin mit Punkten arbeiten.

Das Konzept der Brillouinzone bietet sich an, um die Rückkopplungsmechanismen in einem zweidimensionalen Laserresonator zu identifizieren. Da aufgrund der Wellen-

leitung Rückkopplung ohnehin nur in der Ebene stattfindet, kann die gerade gemachte Betrachtung ohne Einschränkung erweitert werden. Dazu muss man nur den Betrag von k_0 kennen.

Der Betrag der einfallenden Welle ist bei einem Laser durch den spektralen Gewinn des aktiven Materials vorgegeben. Um die potenziellen Richtungen zu bestimmen, wird ein Kreis mit dessen Betrag um den Ursprung 0 gezogen. Die Schnittpunkte mit den Bragg-Linien sind dann die möglichen Streurichtungen. In Bild 8.7 a) ist dies für ein quadratisches Gitter 2. Ordnung aufgezeichnet. Die Breite des spektralen Gewinns wird über die Dicke des Ringes berücksichtigt. Wie zu erkennen ist, kommen im vorliegenden Fall als Streuflächen die Ebenen $\{20\}_L$, $\{10\}_L$ und $\{11\}_L$ in Frage, welche blau, schwarz bzw. rot gezeichnet sind.

Die Streuungen an den $\{20\}_L$ -Ebenen entsprechen dem klassischen Mechanismus zweier gegenläufiger Wellen, wie er in eindimensionalen Resonatoren vorkommt. Er zeigt in der Literatur die geringsten Laserschwellen im Gegensatz zu der ebenfalls auftretenden Lasertätigkeit aufgrund von Streuung an der $\{11\}_L$ -Ebene [22]. Die $\{10\}_L$ -Ebene spielte dagegen für die Lasertätigkeit keine Rolle. Als Abschätzung für die „Güte“ einer möglichen Reflexionsebene dient der effektive Propagationsvektor \mathbf{K} . Er ist als $\mathbf{K} \equiv \frac{1}{2}(\mathbf{k}_0 + \mathbf{k})$ definiert und sollte möglichst gering sein. Anschaulich bedeutet ein \mathbf{K} ungleich Null, dass der gestreute Vektor \mathbf{k} nicht wieder in den Ursprung zurückgestreut wird. Dadurch kann nach mehrmaliger Streuung das Licht aus der aktiven Pumpzone gelangen und wird somit nicht mehr verstärkt.

Nachdem mithilfe der Brillouin-Zonen die Rückkopplungsrichtungen bestimmt wurden, liegt neben dem Betrag auch die Richtung des Wellenvektors \mathbf{k}_0 fest. Um die potenziellen Auskopplungsrichtungen eines an der Rückkopplung beteiligten Wellenvektors zu bestimmen, bedient man sich des Konzeptes der Ewald-Kugel. Mit dessen Hilfe können die Streuungsrichtungen einer einfallenden Welle grafisch bestimmt werden. Dazu wird die Spitze des einfallenden Wellenvektors auf eine Gittersäule gelegt. Um den Ursprung des Vektors wird anschließend eine Kugel mit dessen Betrag gezeichnet. Jeder Schnittpunkt mit einer Gittersäule entspricht dann einer möglichen Reflexionsrichtung.

Dies ist exemplarisch in Bild 8.7 b) für das schon behandelte quadratische Gitter geschehen. Dazu wurde ein an der $\{20\}_L$ -Ebene reflektierter Wellenvektor ausgewählt: Seine Spitze wurde auf eine Gittersäule gelegt und anschließend eine Ewald-Kugel um den Anfangspunkt des Vektors gezogen. Man erkennt fünf Schnittpunkte mit den Säulen. Vier davon gehören zu den potenziellen Rückkopplungsmechanismen. Der fünfte Schnittpunkt stellt eine Auskopplung senkrecht zur Wellenleiter Ebene dar. Der gestreute Vektor ist rot gestrichelt gezeichnet. Der für die Streuung verantwortliche Gittervektor $-\mathbf{g}$ ist als schwarzer Pfeil dargestellt.

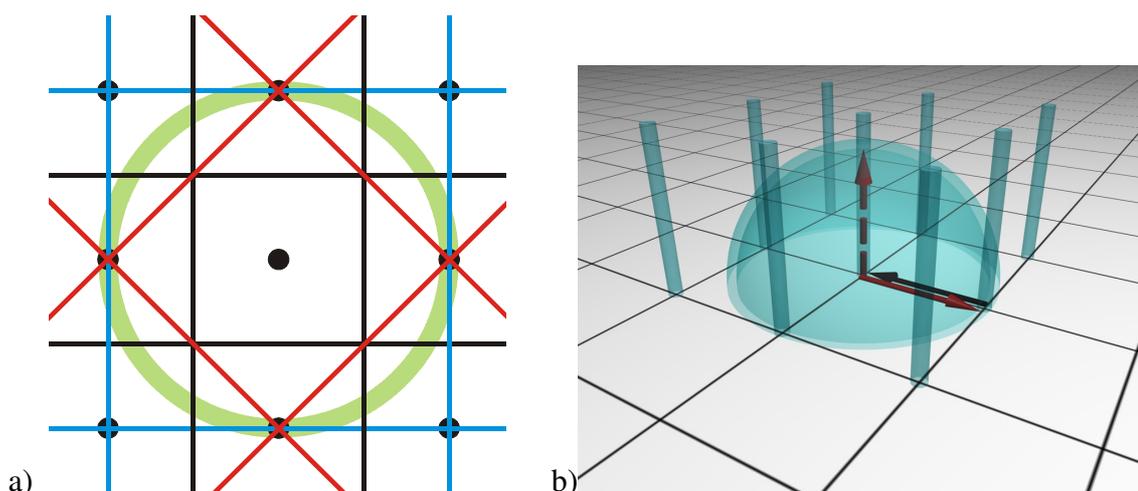


Bild 8.7: a) Darstellung der möglichen Streuungen in einem quadratischen Gitter (schwarze Punkte). Die Bragg-Ebenen $\{20\}_L$, $\{10\}_L$ und $\{11\}_L$ sind in den Farben Blau, Schwarz bzw. Rot gehalten. Die Schnittpunkte dieser Linien mit dem grünen Kreis vom Radius k_0 sind alle Streumöglichkeiten für den Wellenvektor \mathbf{k}_0 . Durch die Breite des spektralen Gewinns existiert eine Variation des Radius k_0 , welche durch die Breite des Kreises erfasst werden kann. Die Verhältnisse im Bild wurden so gewählt, dass es sich um einen 2. Ordnung-Laser handelt. b) Darstellung der dreidimensionalen Ewald-Konstruktion [37]. Der einfallende Wellenvektor (roter Pfeil) wird durch einen Gittervektor (schwarzer Pfeil) senkrecht nach oben gestreut (rot gepunktete Linie). Um die Übersicht zu gewährleisten, sind nur neun Gittervektoren eingezeichnet.

Mithilfe der Bragg-Streuung kann auch der Laserfächer bei eindimensionalen Gittern beschrieben werden. Da er für die Arbeit nur bei Vergleichen relevant ist, wird die Entstehung erst im Anhang 13.3 beschrieben.

Fernfelder unterhalb der Laserschwellen

Bei der Untersuchung der Fernfelder unterhalb der Laserschwelle sind mehrere gebogenen Linien erkennbar (s. Bild 8.8 a) und b). Diese werden in Analogie zu einem ähnlichen Phänomen aus der Oberflächenphysik [70] im Folgenden als Kikuchi-Linien bezeichnet.

Diese Linien werden zum Beispiel bei RHEED (reflection high-energy electron diffraction) Experimenten beobachtet. Bei einem RHEED-Experiment wird mit hochenergetischen Elektronen in einem flachen Winkel auf eine Oberfläche geschossen und die Reflexionen auf einem Leuchtschirm sichtbar gemacht. Die beobachteten Kikuchi-Linien haben ihren Ursprung in quasielastischen Streuungen der Elektronen am zweidimensionalen Oberflächengitter [70][72]. Im ersten Schritt werden die Elektronen beim Auftreffen auf der Oberfläche inelastisch gestreut und an Oberflächenzustände gebunden. Ist die Richtung der gestreuten Teilchen nach dem Stoß statistisch verteilt, liegt eine Situation vor, die durch eine isotrop strahlende Elektronenquelle auf der Oberfläche beschrieben werden kann. Im zweiten Schritt werden die Elektronen am zweidimensionalen Gitter elastisch aus der Ebene heraus gestreut. Liegen die Elektronen energetisch eng zusammen, können auf dem Detektionsschirm Linien zwischen den

Beugungsreflexen beobachtet werden. Ansonsten tragen die Elektronen nur zum Hintergrund bei. Neben Beugung an einem reinen Oberflächengitter kann es in der Oberflächenphysik noch zu weiteren Phänomenen kommen, welche ebenfalls als Kikuchi-Linien bezeichnet werden. So sind bei tieferem Eindringen der Elektronen Wechselwirkungen mit dem Kristall möglich.

Übertragen auf die in dieser Arbeit vorliegende Situation, wird durch das optische Pumpen (unterhalb der Laserschwelle) eine isotrop strahlende Lichtquelle erzeugt. Diese ist bei organischen Materialien energetisch bzw. spektral breit, weshalb keine Kikuchi-Linien mit bloßem Auge beobachtet werden können. Kommt es allerdings zu ASE, entsteht ein spektral eingegengtes Spektrum und unter bestimmten Voraussetzungen können diese Linien beobachtet werden [73]. Besonders gut sollten sie zu sehen sein, wenn Streuzentren oder Gitterfehler vorhanden sind.

Die im folgenden beschriebenen Kikuchi-Linien werden durch die Visualisierung eines engen Spektralbereiches, der winkelabhängig gemessenen Spektren, sichtbar. Näheres zum Messaufbau und zur Darstellung der Daten befindet sich in Abschnitt 5.1.5.

Die theoretische vorliegende Situation der beteiligten Wellenvektoren ist schematisch in Bild 8.8 c) und d) skizziert. Eine Ausgangswelle (roter Pfeil) propagiert durch den Resonator und wird am Gitter durch einen Gittervektor (grüner Pfeil) elastisch gestreut. Die Impulserhaltung in der Wellenleiterebene führt zu dem in Bild 8.8 d) gezeichnetem Dreieck. Da aufgrund der Energieerhaltung der Wellenvektor der gestreuten Welle (blauer Pfeil) dieselbe Länge besitzen muss wie die Ausgangswelle, wird dieser in der Regel aus der Ebene hinausgestreut. Die isotrop strahlende Quelle entspricht in der Zeichnung dem gestrichelten Kreis und sorgt dafür, dass man Linien beobachten kann. Die konkrete Berechnung ist in Anhang 13.2 zu finden.

Im vorliegenden Fall müssen Kikuchi-Linien betrachtet werden, welche in der Nähe des Punktes $(0^\circ, 0^\circ)$ verlaufen. Als Ursache für diese Linien kommen nur die Gittervektoren $\{\mathbf{g}_{10}\}$ in Frage. Linien, welche auf Basis der Gittervektoren $\{\mathbf{g}_{11}\}$ entstehen, sollten um 45° gedreht sein und bei Winkeln um die 30° auskoppeln. Aufgrund der Symmetrie eines quadratischen Gitters handelt es sich bei $\{\mathbf{g}_{10}\}$ um 4 Gittervektoren, was das Auftreten von mindestens 4 Linien erklärt.

Bei der Betrachtung der Fernfelder in Bild 8.8 a) und b) sind acht Linien zu beobachten, welche mehr oder weniger stark ausgeprägt sind. Im Anhang 13.5 sind die Fernfelder für Wellenlängen zwischen 625 nm und 660 nm abgebildet. Man erkennt, dass sich die Lage der Linien je nach dargestellter Wellenlänge verändert. Zudem bilden in jede Richtung zwei Linien ein Paar. Diese Linienpaare bewegen sich, durch die Vergrößerung der dargestellten Wellenlänge, zunächst aufeinander zu und danach voneinander weg. Diese Bewegung ist anhand von Bild 8.8 d) nachvollziehbar, wenn man bedenkt, dass eine Vergrößerung der dargestellten Wellenlängen einer Verkleinerung des zugehörigen Wellenvektors k_0 entspricht. Das Auftreten von 4 Linienpaaren kann demnach auf die 4 Gittervektoren $\{\mathbf{g}_{10}\}$ zurückgeführt werden.

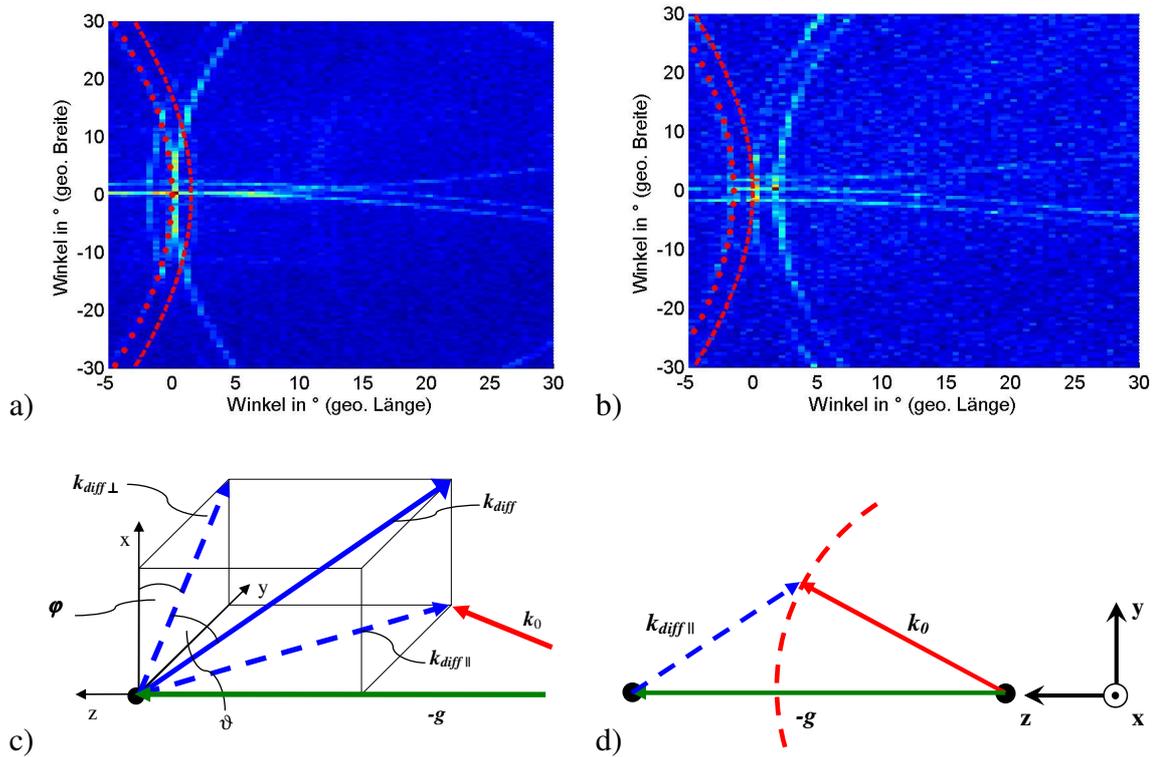


Bild 8.8: a) und b) Fernfeldaufnahmen bei 635,8 nm bzw. 646,4 nm. Die spektrale Breite der Aufnahmen betrug 0,5 nm bzw. 0,12 nm. Die jeweils für eine Streurichtung berechneten Kikuchi-Linien sind rot dargestellt. Dabei wurde zwischen TE (gestrichelte Linie) und TM (gepunktet) unterschieden.

c) und d) Grafische Darstellung der Entstehung von Kikuchi-Linien. Eine in der Ebene laufende Welle (roter Pfeil) wird durch einen Gittervektor (grüner Pfeil) in einen resultierenden Vektor (blauer Pfeil) gestreut. Aufgrund der Energieerhaltung muss die gestreute Welle aus der Ebene auskoppeln. In der Ebene (d) muss der Anteil der gestreuten Welle $k_{diff||}$ (blaue gestrichelte Linie) der Impulserhaltung gehorchen.

Die Erklärung von Linienpaaren kann nicht mehr mit Gittervektoren erfolgen. Hier liegt die Vermutung nahe, dass es sich um zwei unterschiedliche Moden handelt, welche aufgrund der unterschiedlichen effektiven Brechungsindizes n_{eff} zu unterschiedlich langen Wellenvektoren k_0 im Wellenleiter führen. Wie aus Bild 8.8 d) zu entnehmen ist, erhält man eine senkrechte Auskopplung bei 0° nur, wenn $|k_0| = |g_{10}|$ gilt. Daraus folgt für die Bestimmungsgleichung von n_{eff} :

$$k_0 = g_{10} \Leftrightarrow \frac{2 \cdot \pi}{\lambda_g} = \frac{2 \cdot \pi}{\Lambda} \Leftrightarrow \frac{n_{eff}}{\lambda} = \frac{1}{\Lambda} \quad (8.28)$$

$$n_{eff} = \frac{\lambda}{\Lambda}$$

In Bild 8.8 a) und b) sieht man, wie jeweils eine der Doppellinien bei 0° ausgekoppelt wird. Aus den zugehörigen Wellenlängen von 646,4 nm bzw. 635,8 nm kann ein Brechungsindex von $n_{eff} = 1,616$ und ein Brechungsindex von $n_{eff} = 1,589$ berechnet werden. Dies deutet auf eine TE_0 - und auf eine TM_0 -Mode hin.

Aus Wellenleitersimulationen wie sie in Abschnitt 6.4.4 beschrieben werden, erhält man Brechungsindizes von $n_{\text{eff}} = 1,65$ und $n_{\text{eff}} = 1,62$ für die TE- bzw. die TM-Mode. Weitere Moden können in der Simulation bei der gegebenen Schichtdicke nicht beobachtet werden. Dass die auskoppelnden Doppelmoden unterschiedlich polarisiert sind, zeigt das Verschwinden der entsprechenden Linien bei polarisationsabhängigen Messungen (s. Bild 8.9). Dass es sich auch im Wellenleiter um eine TE- und eine TM-Mode handelt, wird durch die im nächsten Abschnitt vorgestellte Modenkopplung untermauert.

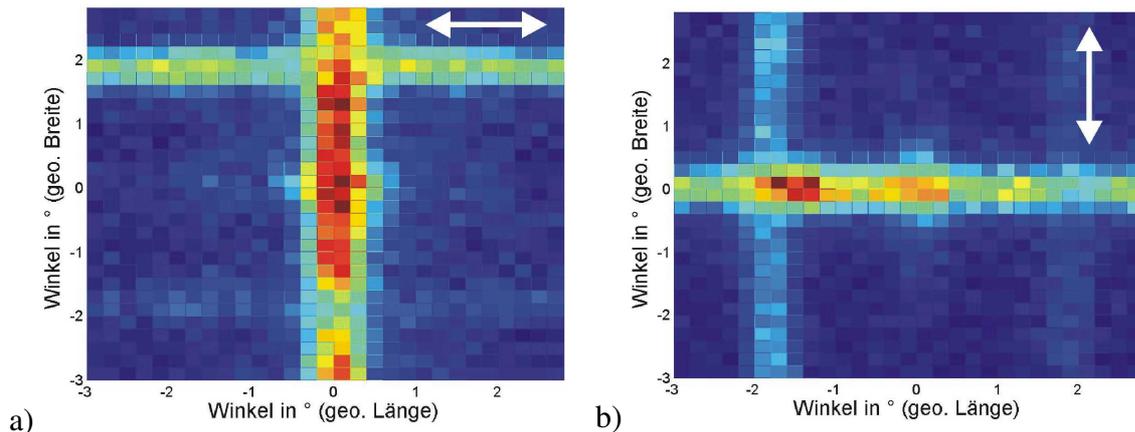


Bild 8.9: Winkelabhängige Aufnahme mit einem Polarisationsfilter waagrecht (a) bzw. senkrecht (b) in Bezug auf die geo. Länge. Es ist die Emission bei 635,8 nm mit einer spektralen Breite von 1 nm abgebildet. Die Linie parallel zur Richtung des Polarisationsfilters, welche um 0° verläuft, wird dadurch geblockt.

Fernfelder oberhalb der Laserschwellen

Oberhalb der Laserschwelle erkennt man deutlich vier Laserpunkte, welche auf der Spitze eines ‚+‘-Zeichens liegen (Bild 8.10 a). Dabei zeigen nähere Untersuchungen, dass auf den Verbindungslinien ebenfalls Lasertätigkeit detektiert werden kann. In Bild 8.10 d) ist ein solches Spektrum am Punkt $(0^\circ, 0^\circ)$ abgebildet. Der Eindruck, dass die Lasertätigkeit in vier Richtungen ausgekoppelt wird, begründet sich durch die hohen Intensitäten bzw. die hohe Auskopplung in diese Richtungen. So befindet sich der Detektor im Zentrum eines solchen Punktes teilweise in Sättigung.

Eine Interpretation dieses Fernfeldes auf Basis von Rückkopplungen an unterschiedlichen Bragg-Linien, wie sie in [22] beschrieben werden, kann dieses Ergebnis nicht erklären. So weisen die potenziellen Fernfelder dort andere Formen auf. Zugleich gehören zu den unterschiedlichen Fernfeldern auch weit auseinanderliegende Laserschwelle. Die Pumpleistung lag bei den hier durchgeführten Messungen allerdings nur geringfügig oberhalb der Laserschwelle, was zusätzlich auf nur einen Rückkopplungsmechanismus hindeutet.

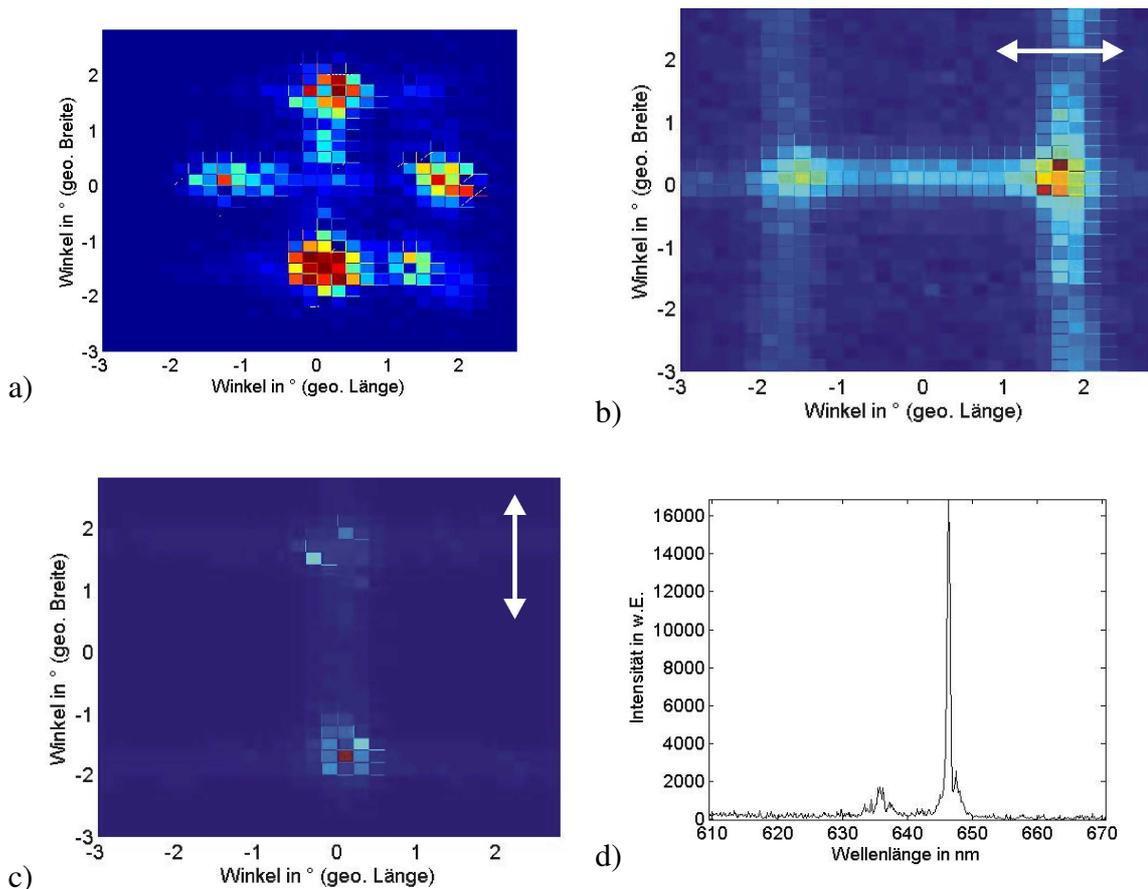


Bild 8.10: a) Fernfeldaufnahmen bei 646,4 nm mit einer spektralen Auflösung von 1 nm überhalb der Laserschwelle. Dieselbe Messung durchgeführt mit einem Polarisationsfilter b) parallel bzw. c) senkrecht in Bezug auf die geo. Länge. d) Spektrum bei der Winkelkoordinate $(0^\circ, 0^\circ)$

Im Folgendem soll zunächst der Rückkopplungs- und danach der Auskopplungsmechanismus identifiziert werden.

Da Lasertätigkeit bei 646,4 nm beobachtet wird, ist mit Blick auf die Ergebnisse aus dem vorangehenden Abschnitt davon auszugehen, dass es sich bei der Lasermode um eine TE_0 -Mode handelt. Diese ist bei der beobachteten Wellenlänge so auf das Gitter abgestimmt, dass die in Bild 8.11 a) skizzierten positiven Rückkopplungen an den $\{20\}_L$ -Ebenen stattfinden kann. Die anderen potenziellen Mechanismen, wie Rückkopplung an den $\{11\}_L$ -Ebenen, sollten erst bei höheren Leistungen anschwingen [22].

Würde die TE -Mode aufgrund von Gitterbeugung 1. Ordnung direkt auskoppeln, müsste dies senkrecht zur Ebene geschehen. Dies kann im vorliegenden Fall allerdings nur bei einem Bruchteil der Laserenergie beobachtet werden. Der weitaus größere Teil wird, wie schon beschrieben, schräg ausgekoppelt.

Dies lässt sich dadurch erklären, dass ein Teil der Energie von der TE -Mode auf eine TM -Mode koppelt. Aufgrund des geringeren Brechungsindex der TM -Mode vergrößert sich die Wellenlänge der geführten Moden bzw. verkürzt sich der zugehörige Wellenvektor. Das Verhältnis der Wellenvektoren bei gleicher Vakuumwellenlänge von

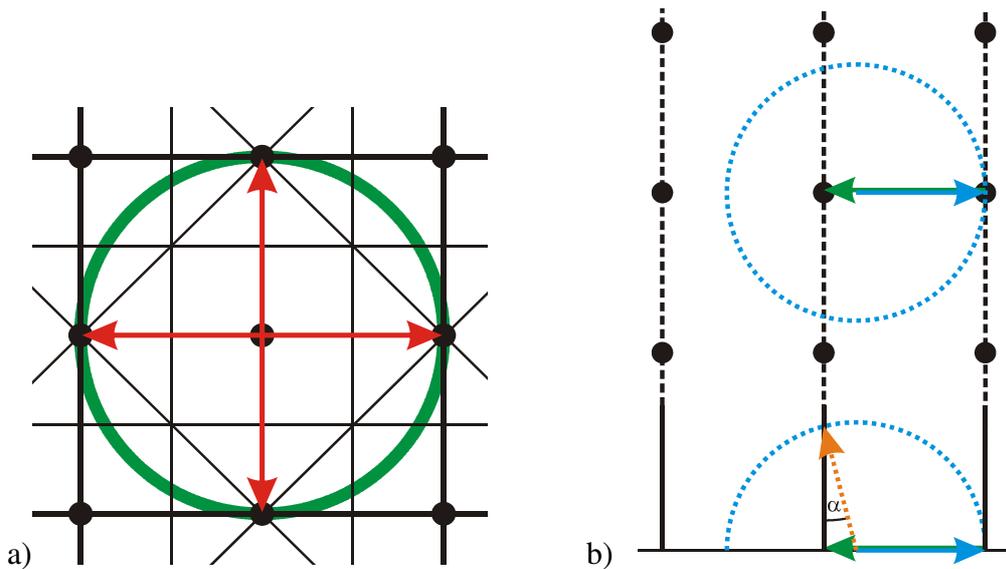


Bild 8.11: a) Zeichnung des reziproken Gitters mit diversen Bragg-Linien. Die für die Rückkopplung verantwortlichen $\{20\}_L$ -Linien sind dicker gezeichnet. Der grüne Kreis stellt den Gewinnbereich des Materials dar und die roten Pfeile die identifizierten Hauptrückkopplungsrichtungen.

b) Auf- und Seitenansicht der Ewaldkonstruktion für eine auskoppelnde TM-Mode aufgrund von Streuung am Gitter (dargestellt durch den Gittervektor (grüner Pfeil)). Es sei darauf hingewiesen, dass es sich in zwei Dimensionen um reziproke Säulen handelt.

TE₀- zu TM₀-Mode beträgt $1,589/1,616 = 0,984$. Dies bedeutet, der Vektor der TM-Mode ist um den Faktor 0,984 kürzer als der Vektor der TE-Mode. Bedenkt man zusätzlich, dass bei der Laserwellenlänge der Gittervektor \mathbf{g}_{10} betragsmäßig gleich dem Vektor der TE-Mode ist, kann die Auskopplungsrichtung der TM-Mode bestimmt werden. Dazu wird der Gittervektor auf 1 und somit der Wellenvektor der TM-Mode auf 0,984 gesetzt. Wird mit dem Wellenvektor eine Ewald-Konstruktion gebildet, wie in Bild 8.11 c) zu sehen ist, kann daraus der Winkel α bestimmt werden:

$$\alpha = \arcsin\left(\frac{1-0,984}{0,984}\right) \quad (8.29)$$

$$\Rightarrow \alpha = 0,95^\circ$$

Unter Berücksichtigung des Snellius'schen Brechungsgesetzes vergrößert sich dieser noch auf $1,51^\circ$, was mit den tatsächlich beobachteten Auskopplungswinkeln zwischen $1,4^\circ$ und $1,6^\circ$ bei einer Schrittweite von $0,2^\circ$ gut übereinstimmt.

Weitere Untersuchungen an Fernfeldern sollen nun die TE-TM-Kopplung bzw. diesen Mechanismus als Grund für die schräge Auskopplung untermauern. Während der Aufnahmen war die Probe im Rezipienten umgedreht eingebaut, sodass der Aufbau zur Laserschwellencharakterisierung genutzt werden konnte. Anstelle der Detektionsoptik befand sich ein 45° -Spiegel im Strahlengang, welcher das Fernfeld auf einen weißen Schirm abbildete. Die so projizierten Fernfelder wurden anschließend mit einer Digital-

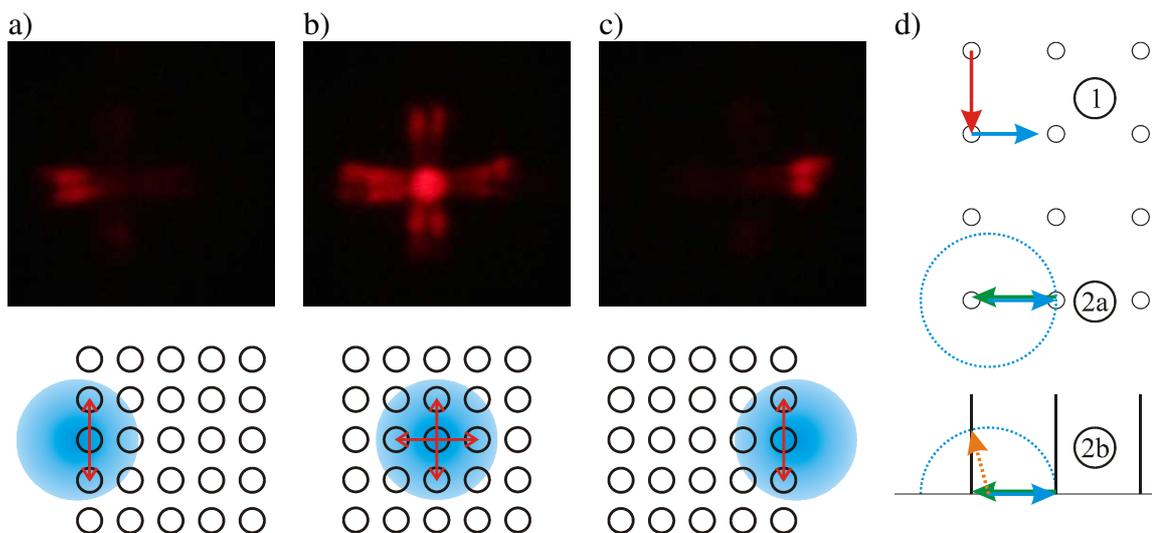


Bild 8.12: a)-c) Fernfelder bei unterschiedlichen Anregungspositionen auf dem Resonator. Die Positionen sind unterhalb schematisch dargestellt. Die blauen Kreise entsprechen der Anregungsfläche und die roten Doppelpfeile der (effektivsten) Rückkopplungsrichtung. Die Anregungsleistung betrug $50 \mu\text{J}/\text{cm}^2$.

d) (1) Schema der Kopplung von einer TE-Mode (roter Pfeil) auf eine TM-Mode (blauer Pfeil) mit anschließender (2) Auskopplung (orangener Pfeil) durch einen Gittervektor (grüner Pfeil). Die Ewaldkugel ist blau gestrichelt eingezeichnet.

kamera aufgenommen. Durch die im Aufbau befindlichen Optiken ist das entstandene Fernbild nicht mehr maßstabsgetreu und lässt nur qualitative Aussagen zu.

Im Unterschied zu den winkelaufgelösten Aufnahmen können Doppelhöcker anstatt Laserpunkte beobachtet werden. Da diese Beobachtung für die Kopplung nicht von Interesse ist, wird erst später darauf eingegangen.

Für die TE-TM-Kopplung sind insbesondere die Aufnahmen vom Fernfeld in Abhängigkeit von der Anregungsposition interessant. Hierzu wurde die Anregungsfläche horizontal von links nach rechts über das Substrat verfahren. Die dazugehörigen Aufnahmen sind in Bild 8.12 a) - c) zu sehen.

Unter dem jeweiligen Bild ist zudem ein Schema des Resonators mit der Anregungsfläche (blau eingezeichnet) abgebildet. Bei Anregung in den Randgebieten ist die senkrechte Rückkopplung effektiver als die horizontale, da in senkrechter Richtung die Anregungsfläche im Resonator größer ist. Dies wird in den Schemata durch rote Doppelpfeile dargestellt.

Bei Betrachtung der zugehörigen Fernfelder ist zuerst der linke Laserpunkt zu sehen, gefolgt von einem vollständigen Fernfeld in der Mitte und abschließend der rechte Laserpunkt. (Das um 90° gedrehte Verhalten ist ebenfalls zu erkennen, wenn man die Anregungsfläche senkrecht verfährt.)

Geht man davon aus, dass Rückkopplungs- und Auskopplungsrichtung orthogonal zueinanderstehen, sind die schematischen Zeichnungen mit den beobachteten Fernfeldern äquivalent. Im Bild der TE-TM-Kopplung bedeutet dies, dass die TE-Mode

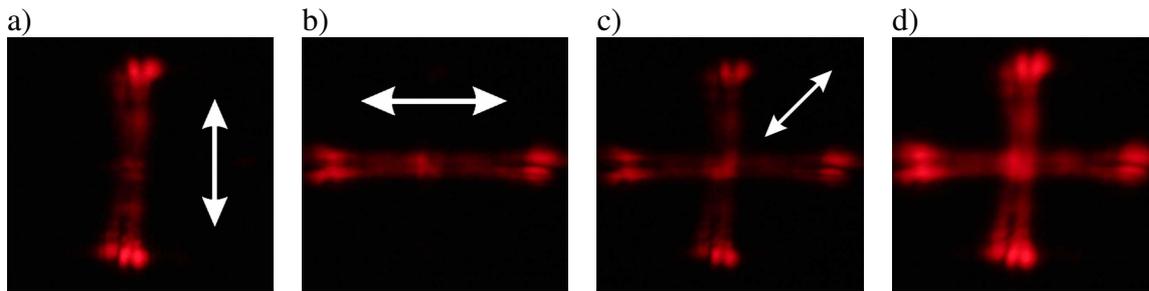


Bild 8.13: a)-d) Fernfelder mit und ohne Polarisator für ein mittig angeregtes Feld. Die Richtung des Polarisationsfilters ist durch einen weißen Doppelpfeil symbolisiert. Die Anregungsleistung lag bei $140 \mu\text{J}/\text{cm}^2$.

senkrecht auf eine TM-Mode koppelt. Dieses Verhalten ist in Bild 8.12 d) für die Anregung am linken Rand des Resonators skizziert. Im Teil 1 des Bildes ist die Kopplung der Lasermode (roter Pfeil) auf eine TM-Mode (blauer Pfeil) dargestellt.

Um eine Auskopplung der TM-Mode zu ermöglichen, muss diese im Resonator verlaufen, das heißt, sie sollte als Vorzugsrichtung nach rechts laufen. Die Auskopplung geschieht dann aufgrund von Gitterbeugung, wie sie bereits oben erläutert wurde. Sie ist zudem im Teil 2 von Bild 8.12 d) nochmal in Draufsicht und Seitenansicht skizziert. Man erkennt, dass das auskoppelnde Laserlicht einen Laserpunkt auf der linken Seite erzeugt, wie es auch im Experiment zu sehen ist.

Es wird verständlicher, dass die TE-Mode senkrecht auf eine TM-Mode koppelt und nicht auf eine parallel verlaufende TM-Mode, wenn man das quadratische Gitter als zwei unabhängige lineare Gitter auffasst. Theoretische Untersuchungen linearer Gitter zeigten, dass in linearen Medien eine TE_0 -Mode nicht auf eine parallel verlaufende TM_0 -Mode koppelt. Bei schrägem Einfall auf das Gitter kann es allerdings zu einer Kopplung kommen. Diese wird für einen Winkel von 90° maximal ([74], [76]).

In den winkelaufgelösten Aufnahmen war die Auflösungsgrenze so groß, dass die Feinstruktur des Fernfeldes nicht mehr detektiert werden konnte. Dies wurde erst durch die Projektion des Fernfeldes auf einen Schirm mit dem Auge bzw. durch eine Kamera sichtbar. In Bild 8.13 a)-d) ist dieses Fernfeld für eine mittige Anregung ohne und mit Polarisationsfilter zu sehen. Die Richtung des Filters ist durch einen weißen Doppelpfeil angedeutet. Es ist gut zu erkennen, dass die zuvor vermuteten Laserpunkte aus Doppelhöckern bestehen, bzw. in senkrechter Richtung sich zusätzlich ein dritter Höcker andeutet.

In Hinblick auf die für quadratische Gitter beobachteten Fernfelder müsste das beobachtete Fernfeld am ehesten mit den ringförmigen Moden verglichen werden. Dafür spricht zum einen, dass sich durch Überlagerung der vier Laserpunkte eine ringförmige Mode bilden lässt. Zudem treten die ringförmigen Moden für quadratische Gitter mit Rotationssymmetrie [23]. Aufgrund der Herstellungsweise der Substrate kann davon ausgegangen werden, dass diese aus rotationssymmetrischen Säulen auf einem quadratischen Gitter bestehen. Eine zufällige Asymmetrie, wie sie durch Doppel-

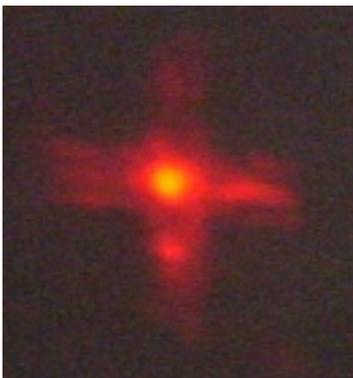
belichtung in der Laserinterferenzlithografie entstehen kann, ist dagegen auszuschließen.

Wie in [23] berichtet, muss zwischen TE- und TM-ähnlichen Moden unterschieden werden. TE-ähnliche Moden weisen eine tangentielle Polarisierung auf, wohingegen die TM-ähnlichen Moden radial polarisiert sind (s. Seite 31). Beobachtet man das Verhalten der hier vorliegenden Laserpunkte, zeigt sich eine radiale Polarisierung der vier Laserpunkte. Dies bedeutet, dass eine TM-Polarisation vorliegt.

Ein einzelner Doppelhöcker verhält sich hingegen wie eine tangential polarisierte Mode, also wie eine TE-ähnliche Mode. Diese Beobachtung könnte mit der oben beschriebenen senkrechten Kopplung zwischen Rück- und Auskopplung zusammenhängen. So können die Drehung und die schräge Auskopplung als Faltung betrachtet werden. Würde man diese rückgängig machen, also die zusätzliche Kopplung auf eine TM-Mode vernachlässigen, würde demnach eine TE-ähnlich polarisierte, ringförmige Mode senkrecht auskoppeln. Zwar wird ein Teil der Laserleistung direkt senkrecht ausgekoppelt, jedoch ist die Auflösung bzw. die Intensität zu gering, um eine Aussage anhand der Bilder zu treffen.

Die genauen Ursachen für die TE-TM-Kopplung sind noch nicht vollständig geklärt. Eine Einflussgröße ist vermutlich die Schichtdicke. So konnte bei Versuch $V280nm$ im Wesentlichen nur ein mittiger Laserpunkt beobachtet werden, während bei dem Versuch $V350nm$ vier weitere Laserpunkte existieren. Dies ist in Bild 8.14 a) und b) für einen Säulenradius von 100 nm zu sehen.

a) $V280nm$



b) $V350nm$

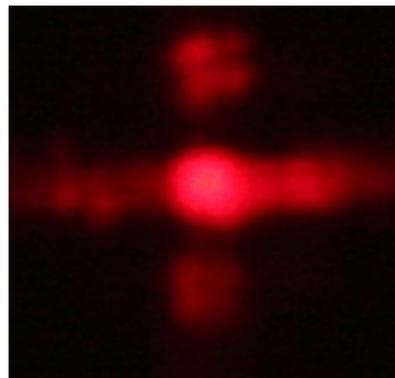


Bild 8.14: a) und b) Fernfeld für Resonatoren mit einem Säulenradius von 100 nm
Die Schichtdicke betrug 280 nm ($V280nm$) bzw. 350 nm ($V350nm$).

8.2 Hexagonale Gitter

Das hexagonale Gitter weist von allen zweidimensionalen Gittertypen mit „einatomiger“ Basis die höchste Symmetrie auf. Dies ist für winkelunabhängige Bandlücken von besonderem Interesse, weshalb sich das Gitter in vielen Ansätzen großer Beliebtheit erfreut.

Die Herstellung ist, im Vergleich zu linearen oder quadratischen Gittern, anspruchsvoller. Bei elektronenstrahlgeschriebenen Gittern ist es aufgrund der Digitalisierung nicht möglich, die Gitterkoordinaten exakt anzufahren. Hierdurch treten Rundungsfehler auf. Bei der Laserinterferenzlithografie erreicht man die hexagonale Struktur durch eine Dreifachbelichtung, indem man ein lineares Interferenzmuster jeweils um 60° dreht. Die resultierende Gitterform ist aber ohne weitere experimentellen Vorkehrungen zufällig gegeben [68].

Zwei gleichlange Vektoren, die einen Winkel von 60° einschließen, bilden die Einheitsvektoren \mathbf{a}_1 und \mathbf{a}_2 eines hexagonalen Gitters. Ihr Betrag a entspricht der Gitterperiode Λ und wird hier gleichwertig verwendet. Das so aufgespannte Gitter im Ortsraum ist in Bild 8.15 a) zu sehen. Die nach Formel (8.24) berechneten Basisvektoren \mathbf{G}_1 und \mathbf{G}_2 des reziproken Gitters sind schematisch als rote Pfeile skizziert. Für ihre Länge gilt:

$$|\mathbf{G}_i| = \frac{4\pi}{a\sqrt{3}} \quad (8.30)$$

Das reziproke Gitter ist dementsprechend um 30° gedreht, was in Bild 8.15 b) noch nicht berücksichtigt wurde. Hier ist die irreduzible Brillouin-Zone mit ihren Hochsymmetriepunkten Γ , M und K skizziert.

Nach dem nächsten Abschnitt, der die wichtigsten Ergebnisse aus der Literatur aufzeigt,

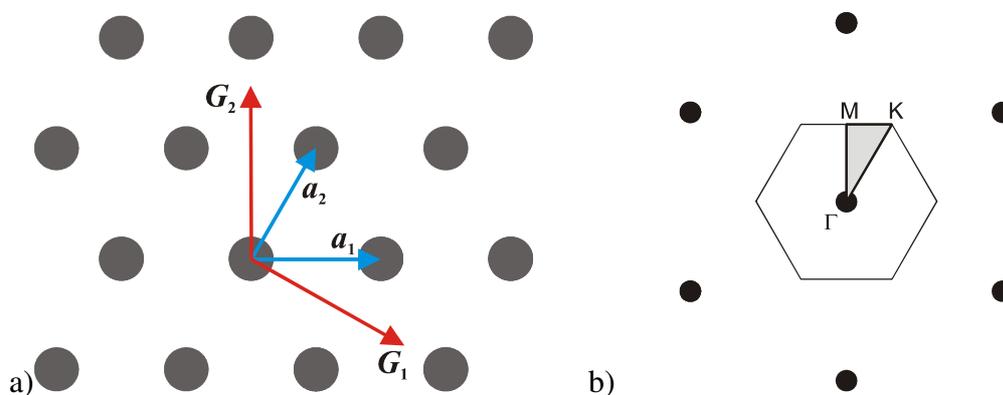


Bild 8.15: a) Ausschnitt aus einem hexagonalen Gitter im Ortsraum. In Blau sind die Basisvektoren \mathbf{a}_1 und \mathbf{a}_2 abgebildet. Die sich daraus ergebenden Basisvektoren für den reziproken Raum sind rot dargestellt.

b) 1. Brillouin-Zone des hexagonalen Gitters. Die Hochsymmetriepunkte M und K werden häufig auch als X und J bezeichnet.

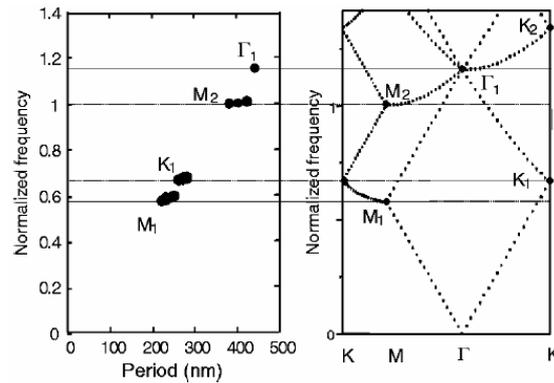


Bild 8.16: Experimentelle Ergebnisse (linker Teil) und eine kalkulierte Bandstruktur (rechter Teil) für hexagonale Laserresonatoren [77] (period = Gitterperiode; Normalized frequency = normierte Frequenz).

werden die untersuchten Strukturen beschrieben. Abschnitt 8.2.3 beschäftigt sich mit der Identifizierung der Rückkopplungsmechanismen. Im Anschluss daran werden die Ergebnisse diskutiert.

8.2.1 Stand der Technik

Über Laser auf Basis hexagonaler Gitter existieren zahlreiche Veröffentlichungen, sowohl im anorganischen als auch organischen Bereich. Für diese Arbeit sind besonders die in [77] vorgestellten Ergebnisse interessant, da die verwendeten Strukturen Gitterperioden zwischen 180 nm und 440 nm abdecken und als aktives Material Alq₃:DCM diente. Unterschiede bestehen in der Verwendung von Löchern in SiO₂ anstelle von Säulen sowie einem konstanten Lochdurchmesser. In Bild 8.16 a) sind die aus der Veröffentlichung stammende Bandstruktur und die experimentellen Ergebnisse zu sehen. Die normalisierte Frequenz ω_{norm} berechnet sich für eine gegebene Laserwellenlänge λ_l anhand der Formel:

$$\omega_{norm} = \frac{a}{\lambda_l} \cdot n_{eff} \quad (8.31)$$

Für die Gitterperiode a und den effektiven Brechungsindex n_{eff} wurden die experimentellen bzw. aus Wellenleitersimulationen stammenden Werte genommen. Wie in Bild 8.16 a) zu erkennen ist, können die vier Klassen jeweils einem Hochsymmetriepunkt in der Bandstruktur zugeordnet werden. Jeder Punkt entspricht dabei einem anderen Rückkopplungsmechanismus. Weitere Untersuchungen mithilfe der Pumpgeometrie zeigten zudem, dass eine wirkliche zweidimensionale Rückkopplung nur für den K₁-Punkt existiert. Für den Γ_1 -Punkt ist diese zwar auch möglich [78], die Ergebnisse weisen jedoch auf eine vornehmliche eindimensionale Rückkopplung hin⁸.

⁸ Mit dem Begriff „eindimensional“ ist immer gemeint, dass die Rückstreuung, wie bei einem DFB-Laser, in die entgegengesetzte Richtung vonstatten geht. Im vorliegenden Fall würden somit drei eindimensionale Resonatorrichtungen existieren.

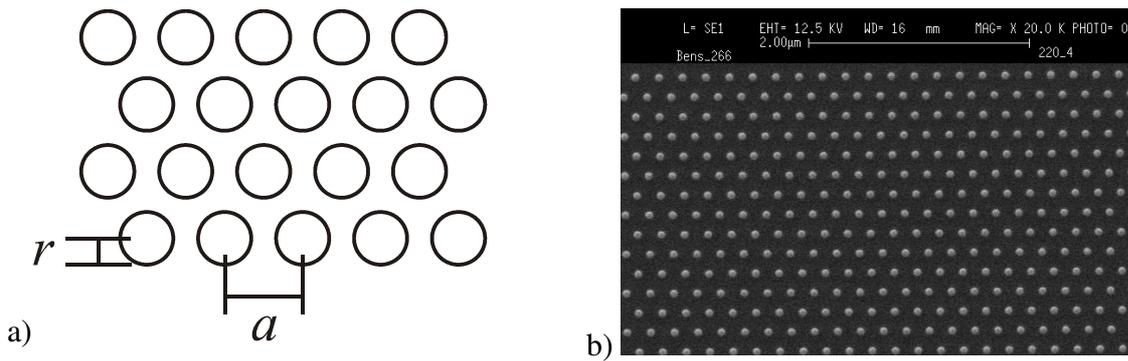


Bild 8.17: a) Schema der verwendeten Strukturen mit der Periode a und dem Säulenradius r .
b) REM-Aufnahme eines hexagonalen Gitters mit einer Periode von $a = 220 \text{ nm}$ [69].

8.2.2 Probenübersicht

Die Proben bestehen aus elektronenstrahlgeschriebenen Strukturen und sind vom Schichtaufbau identisch mit den quadratischen Gittern (s. Abschnitt 8.1). Ein Schema der Resonatoren und eine REM-Aufnahme sind in Bild 8.17 a) und b) zu sehen. Die SiO_2 -Säulen befinden sich auf einem hexagonalen Gitter mit der Periode a . Ihre Radien r variieren für die verschiedenen Resonatorfelder. Insgesamt wurden sieben Radien untersucht. Tabelle 8.5 gibt einen Überblick über die gewählten Parameter.

Tabelle 8.5: Übersicht der untersuchten Resonatoren mit hexagonaler Geometrie.

a in nm	r in nm						
220	40	50	60	70	80	90	100

Die Schichtdicke der Alq_3 :DCM-Schicht betrug 300 nm bei einer Dotierkonzentration von 3 mol\% .

8.2.3 Rückkoppelungsmechanismen

Das Gitter war im Experiment so ausgerichtet, wie es in Bild 8.17 a) zu sehen ist. Dementsprechend ist das reziproke Gitter um 30° gedreht. Zwei der drei Γ -K-Richtungen liegen somit waagrecht. Dies wurde für alle weiteren Bilder berücksichtigt.

In Bild 8.18 ist das Gitter im Impulsraum für eine Gitterperiode von 220 nm skizziert. Der grüne Kreis deckt alle Wellenvektoren ab, welche die Vakuumwellenlängen $\lambda_0 = 600\text{-}650 \text{ nm}$ und die effektiven Brechungsindizes $n_{\text{eff}} = 1,58\text{-}1,65$ aufweisen. Um das Bild übersichtlich zu halten, wurden nur die wichtigsten Bragg-Linien angedeutet.

Es existiert in allen sechs Γ -M-Richtungen ein Schnittpunkt mit den $\{10\}_L$ -Bragg-Linien, an denen jeweils eine Welle gebeugt werden kann. Dies ist in Bild 8.18 a) exemplarisch für einen einfallenden Vektor (roter Pfeil), den zugehörigen Gittervektor (schwarzer Pfeil) und den resultierenden Vektor (blauer Pfeil) eingezeichnet. Die Vektoren verlaufen parallel und entsprechen dem Rückkopplungsmechanismus bei

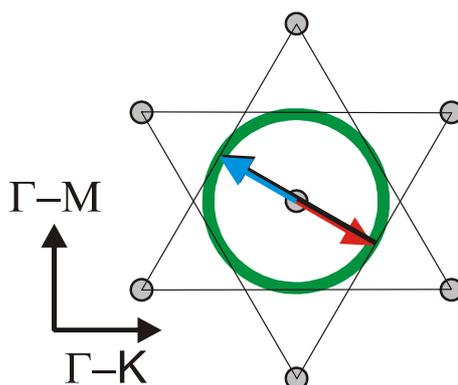


Bild 8.18: Reziproke Darstellung des hexagonalen Gitters für eine Gitterperiode von 220 nm. Um das Bild übersichtlich zu halten, sind nur die wichtigsten Bragg-Linien eingezeichnet. Exemplarisch werden die Streuungen eines einfallenden Wellenvektors (rote Pfeile) durch die Gittervektoren (schwarze Pfeile) mit den zugehörigen resultierenden Vektoren (blaue Pfeile) dargestellt.

einem linearen Gitter. Ein Auskopplungsmechanismus existiert für diesen Resonator nicht. In diesem Sinne kann man von einem 1. Ordnung-Laser sprechen. Die identifizierte Rückkopplung stimmt mit dem M_1 -Punkt in Bild 8.16 überein.

8.2.4 Gitter mit einer Gitterperiode von 220 nm

Bei den eben identifizierten Rückkopplungsmechanismen handelt es sich um Bragg-Reflexionen, welche an den $\{10\}_L$ -Linien erfolgen. Daraus ergeben sich für die Laser drei Rückkopplungsrichtungen, welche in Bild 8.19 a) als rote Doppelpfeile dargestellt sind.

Innerhalb des Resonators handelt es sich bei den Lasermoden um Blochwellen. Verlässt ein Teil der Mode den periodischen Bereich, also den Resonator, handelt es sich um planare Wellen im Wellenleiter, welche in dieselbe Richtung laufen. Liegt die Pumpleistung oberhalb der Laserschwelle, sind durch die Streuung im Wellenleiter indirekt die Rückkopplungsrichtungen zu beobachten. In Bild 8.19 b) ist dies für ein Resonatorfeld mit einem Säulenradius von 70 nm zu sehen. Man erkennt ein sternförmiges Muster um die helle Anregungsfläche herum. Es stimmt mit den Richtungen aus Bild 8.19 a) überein, was die theoretisch bestimmte Rückkopplung untermauert.

Die einzelnen Laserfelder schwingen auf bis zu drei Wellenlängen an (s. Bild 8.19 c), welche sich mit zunehmendem Säulenradius ins kurzwellige Spektrum verschieben. Dieses Verhalten konnte schon bei den quadratischen Gitterresonatoren beobachtet werden (s. Abschnitt 8.1.3). Wie in diesem Fall nehmen die Säulen, welche einen niedrigeren Brechungsindex aufweisen als die aktive Schicht, ein größeres Rauminvolumen ein. Dies verursacht eine Abnahme des effektiven Brechungsindex und damit eine Verschiebung der Bragg-Wellenlänge.

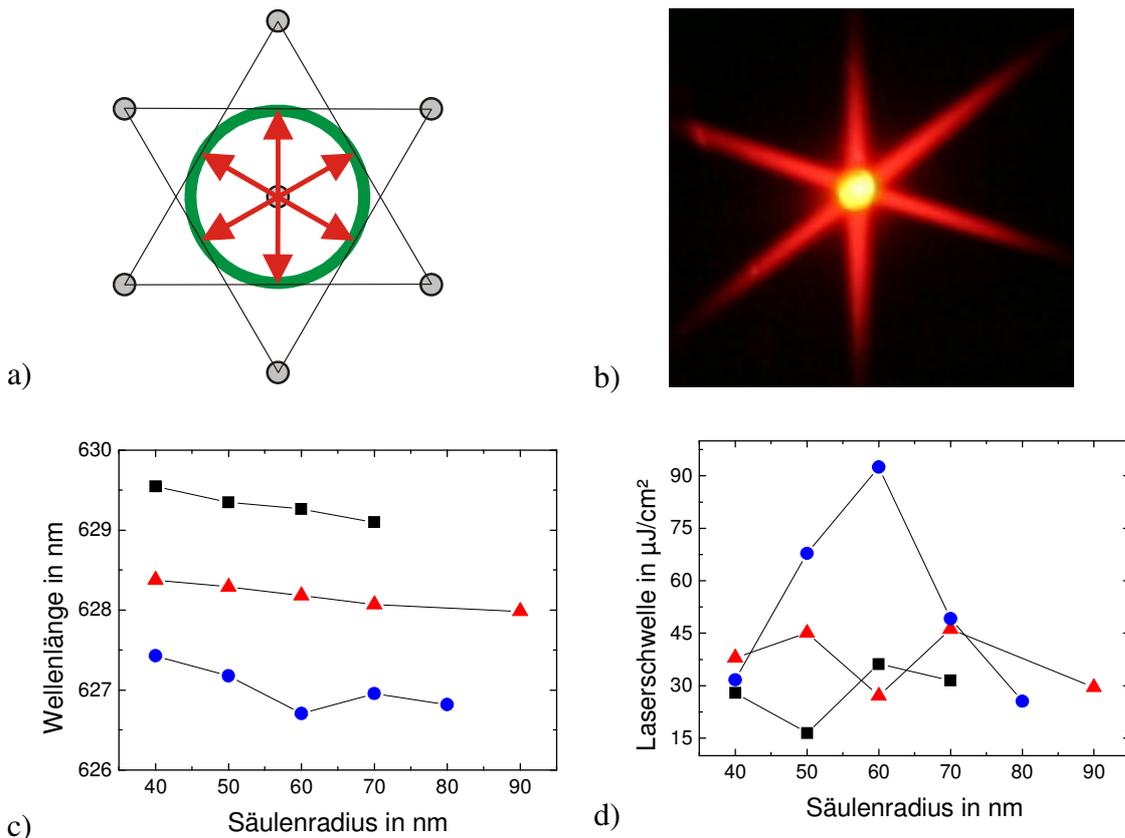


Bild 8.19: a) Ausbreitungsrichtungen (rote Doppelpfeile) im hexagonalen Gitter mit einer Periode von 220 nm. Die Darstellung erfolgt konsistent mit dem Experiment im reziproken Raum. b) Foto eines angeregten Feldes mit einem Säulendurchmesser von 70 nm. c) Abhängigkeit der Laserwellenlängen vom Säulenradius (d) mit den zugehörigen Laserschwel­len. Die drei unterschiedlichen Laserwellenlängen sind durch drei unterschiedliche Farben und Formen abgebildet.

Der Abstand der drei auftretenden Laserwellenlängen beträgt ungefähr 1 nm und deutet auf drei voneinander unabhängig anschwingende Resonatorrichtungen hin. Diese könnten durch die Herstellungsart bedingt sein. So besitzt der verwendete Elektronenstrahlschreiber, aufgrund der Digitalisierung der Daten, eine Positioniergenauigkeit von 1,25 nm. Dadurch können sich die waagerechten Gitterreihen in senkrechter Richtung um bis zu 0,56 nm verschieben.

Aus der Laserwellenlänge $\lambda_0 = 629$ nm und einem effektiven Brechungsindex von 1,64, ergibt sich für die normierte Kreisfrequenz $\omega = a \cdot n_{\text{eff}} / \lambda_0$ ein Wert von 0,57. Ein Vergleich dieses Wertes mit den in Abschnitt 8.2.1 vorgestellten Daten aus [77] zeigt eine gute Übereinstimmung mit der identifizierten Lasertätigkeit am M_1 -Punkt.

Die Laserschwel­len sind in Bild 8.19 d) zu sehen. Mit Ausnahme der kurzwelligen Moden schwanken die Laserschwel­len im Bereich von 15-45 $\mu\text{J}/\text{cm}^2$ um die 30 $\mu\text{J}/\text{cm}^2$ herum. Die hohen Laserschwel­len bei den Säulenradien von 50 nm und 60 nm für die kurzwelligen Moden fallen heraus und konnten nicht geklärt werden.

8.3 Zusammenfassung

Die Variation der Säulenradien zeigte bei hexagonalen und quadratischen Gittern 1. Ordnung nur einen geringen Einfluss auf die Laserschwelle. Bei den quadratischen Gittern 2. Ordnung konnte dagegen ein optimaler Säulenradius von 80 nm für eine geringe Laserschwelle und eine hohe Auskopplung bestimmt werden.

Weiterführende Untersuchung, welche im Anhang 13.7 und 13.8 angefügt sind, deuten darauf hin, dass auch bei senkrecht emittierenden Lasern auf der Basis hexagonaler und rechteckiger Gittersymmetrien ebenfalls kleinere Radien von Vorteil sind. Zum einen zeigen die rechteckigen Gitter dort ein Minimum in der Laserschwelle, zum anderen tritt, wie bei den quadratischen Gittern, bei größeren Säulenradien ein multimodiges Laserspektrum auf.

Um die optimalen Parameter zu bestimmen, sind noch weitere Untersuchungen mit Blick auf die Auskopplungsleistung durchzuführen.

Bei den quadratischen Gittern 2. Ordnung wurde ein Fernfeld beobachtet, welches nicht durch eine einfache Bragg-Streuung erklärt werden konnte. Durch systematische Untersuchungen des Fernfeldes gelang es erfolgreich, ein Modell zur Deutung der Beobachtung zu entwickeln. Das Modell beruht auf einer Kopplung zwischen einer TE-Mode, welche Lasertätigkeit zeigt, und einer TM-Mode, welche für die schräge Auskopplung verantwortlich ist.

Einen Einfluss auf die Effektivität der Kopplung scheint die Schichtdicke der aktiven Schicht zu haben. Um dies zu verifizieren, sind allerdings noch weitere Versuche nötig.

9 Ausblick

Ein Ziel im Bereich organischer Laser ist bis heute, elektrisch gepumpte Laser zu realisieren. Optisch gepumpte Systeme bleiben aber weiterhin interessant, insbesondere dann, wenn eine günstige Pumpquelle zur Verfügung steht.

Einen weiteren Schritt im Hinblick auf Kostenminderung und hohe Systemintegration ermöglichen hybride Systeme aus anorganischen Pumpquellen und organischen Lasern. Eine mögliche Konfiguration ist in Bild 9.1 zu sehen. Als Grundlage dient eine oberflächenemittierende GaN-Laserdiode. Sie emittiert im Bereich von 400 nm und konnte bereits dazu genutzt werden, organische Laser aus Alq₃:DCM zu pumpen [75]. Auf die Diode muss im zweiten Schritt eine transparente Zwischenschicht aufgebracht werden, damit die Mode des organischen Lasers nicht in die GaN-Schicht hineinragt und absorbiert wird.

Für die optische Rückkopplung des organischen Lasers bietet es sich an, die Oberfläche der Organik mithilfe der Laserinterferenzablation zu strukturieren. Sie wurde erfolgreich an Alq₃:DCM-Lasern demonstriert (s. Abschnitt 7) und kommt ohne weitere Zwischenschritte aus. Um das gesamte Bauteil vor Sauerstoff zu schützen, muss es zusätzlich mit einer Glashaube abgedeckt werden. Hier bietet sich ein Glas an, welches die Pumpwellenlänge absorbiert. Durch die Reduktion der Ansteuerelektronik und dem Wegfall optischer Komponenten reduziert sich die Größe auf die eines Laserpointers. Dabei ist jede beliebige Wellenlänge im sichtbaren Bereich realisierbar. Eine nahe-liegende Anwendungsmöglichkeit stellen deshalb kleine Laserprojektionssysteme dar.

Ein weiterer Entwicklungsschritt ist das Einbringen von Flüssigkristallen in die aktive

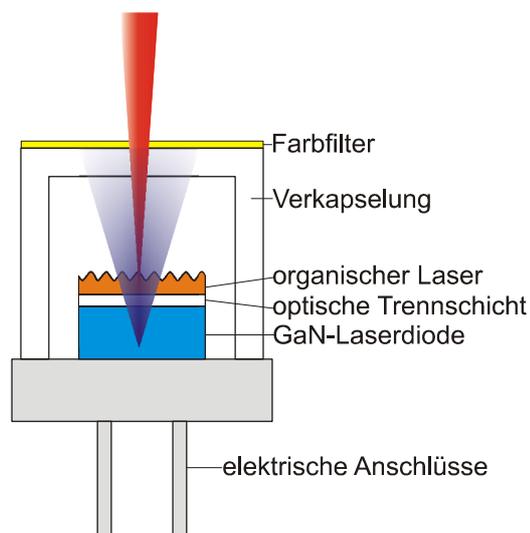


Bild 9.1: Schema eines hochintegrierten hybriden Lasersystems aus anorganischer Pumpquelle und organischem Laser.

Schicht. Durch Anlegen einer elektrischen Spannung können diese den effektiven Brechungsindex verändern und somit die Laserwellenlänge durchstimmen. Da zwei transparente leitfähige Kontakte notwendig sind, welche die Lasermode nicht beeinflussen dürfen, entstehen neue Herausforderungen an das Schichtdesign und deren Herstellung.

Neben den hybriden Systemen besitzt auch eine Trennung von Pumpquelle und Laser Vorteile. Diese werden zum Beispiel bei Lab-on-a-Chip-Systemen sichtbar, welche bevorzugt in der Analytik eingesetzt werden. Eine mögliche Struktur ist in Bild 9.2 zu sehen. Ein organischer DFB-Laser 1. Ordnung wird optisch gepumpt und erzeugt so eine spektral enge Laseremission. Diese kann in einen Wellenleiter, der an das Resonatorfeld anschließt, eingekoppelt werden. Die Laserstrahlung regt in einem Mikrofluidikkanal Farbstoffmarker zur Emission an. Diese kann wiederum in einen Wellenleiter eingekoppelt werden, an dessen Ende ein organischer Fotodetektor sitzt. Dieses einfache System kann durch die Aneinanderreihung von Lasern mit unterschiedlichen Emissionswellenlängen beliebig erweitert werden, sodass es universell im Bereich der Analytik eingesetzt werden kann. Hier können die organischen Festkörperlaser ihren Vorteil, jede beliebige Wellenlänge im sichtbaren Bereich abzudecken, gegenüber anorganischen Lasern ausspielen. Je nach Bedarf kann die Wellenlänge an spezielle Farbmarker angepasst werden und nicht umgekehrt, wie es heute noch üblich ist. Durch die potenziell günstige Herstellung kann auf eine erneute Nutzung des Systems verzichtet werden, was mögliche Verunreinigungen und Verfälschungen der Messungen verhindert.

Bevor ein derartiges System marktreif wird, müssen noch zahlreiche Fragen geklärt und Konzepte optimiert werden. Ein sehr vielversprechendes Konzept wird in einer

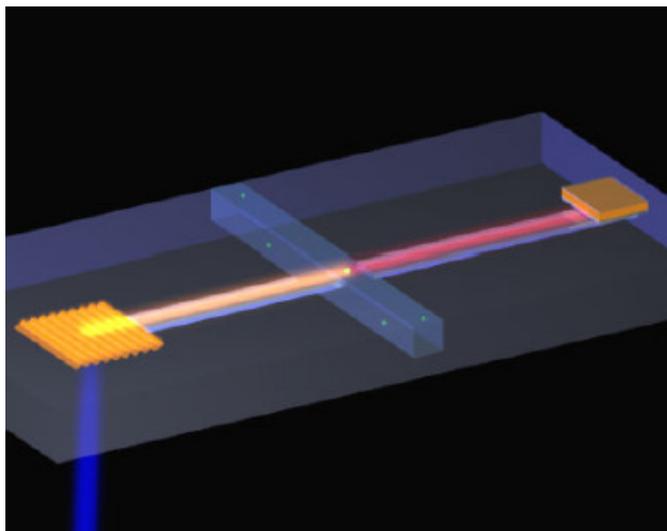


Bild 9.2: Möglicher Aufbau eines Lab-on-a-Chip-Systems [37]. (Von links nach rechts) Ein organischer Laser wird optisch gepumpt und die Emission in einen Wellenleiter gekoppelt. Dieser kreuzt einen Mikrofluidikkanal und regt die darin befindlichen Marker an. Die Emission kann in einen zweiten Wellenleiter eingekoppeln und über das evaneszente Feld in einer organischen Fotodiode detektiert werden.

Kooperation zwischen dem IMT und dem LTI verfolgt. Hier liegt als Ausgangsmaterial PMMA vor. In einem ersten Schritt werden mithilfe des Heißprägens die Resonatorstrukturen in das PMMA-Substrat geprägt. Die Wellenleiter entstehen durch DUV-Belichtung. Dabei wird ausgenutzt, dass sich durch die Bestrahlung der Brechungsindex des PMMA erhöht. Im letzten Prozessschritt wird anschließend das Lasermaterial durch eine Schattenmaske auf die Resonatorfelder aufgebracht.

In Voruntersuchungen konnte bereits die Einkopplung von ASE aus einer unstrukturierten Alq_3 :DCM-Schicht in einen PMMA-Wellenleiter gezeigt werden [79]. Kürzlich gelang es in einem zweiten Schritt Lasertätigkeit anzuregen und in den Wellenleiter einzukoppeln [80].

Im Bereich der Herstellungstechniken von Resonatoren sind die in Abschnitt 4.1.4 vorgestellten Gummiopale eine interessante Forschungsrichtung. Sie bieten eine einfache Herstellung, sind kostengünstig herzustellen und flexibel. Letzteres könnte für das Durchstimmen der Lasertätigkeit genutzt werden. Prinzipiell eignet sich die Oberfläche solcher Opale als Laserresonator. In Bild 9.3 sind die Emissionsspektren knapp und weit oberhalb der Laserschwelle zu sehen. Im ersten Fall wurde nur eine Laserwellenlänge beobachtet, während im zweiten Fall über einen weiten Spektralbereich Laseremission vorhanden ist.

Dieses multimodige Spektrum wurde bereits bei ähnlichen Systemen beobachtet und als eine Unordnung in der Oberfläche gedeutet.

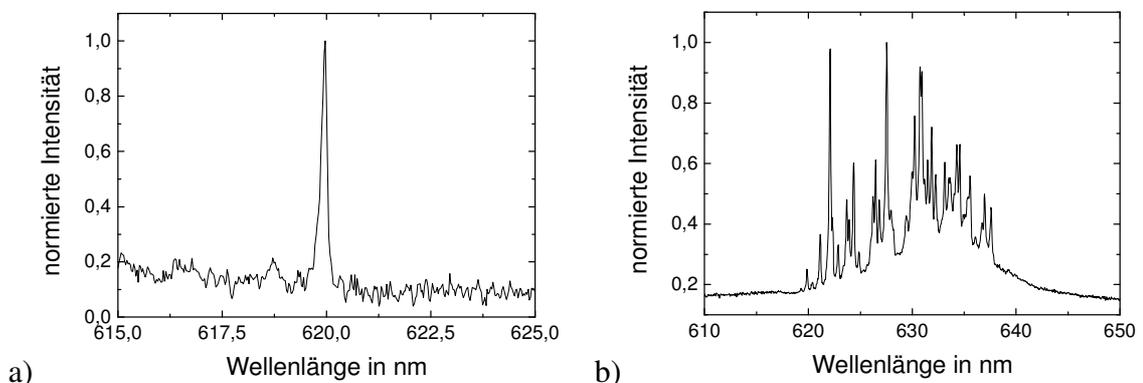


Bild 9.3: a) Laserspektrum eines Gummiopal-Lasers. Die aktive Schicht besteht aus 350 nm Alq_3 :DCM. b) Bei höheren Leistungen detektiertes Spektrum.

10 Danksagung

Die vorliegende Dissertation entstand am Lichttechnischen Institut der Universität Karlsruhe. An erster Stelle danke ich insbesondere meinem Doktorvater Prof. Dr. Uli Lemmer, der mich ausgezeichnet in einem spannenden Forschungsgebiet betreute und meine Arbeit unterstützte. Neben der fachlichen Begleitung ermöglichte er mir zudem Einblicke in den Aufbau der damals neu gegründeten Arbeitsgruppe „Visuelle Informationstechnik und Optoelektronik“, was für mich sehr interessant war.

Für die Übernahme des Korreferats und der damit verbundenen Arbeit bedanke ich mich recht herzlich bei Prof. Dr. Jürg Leuthold vom Institut für Hochfrequenztechnik und Quantenelektronik (IHQ) der Universität Karlsruhe (TH).

Das BMBF ermöglichte im Rahmen der Projekte „Durchstimmbare Photonische-Kristall-Laser auf Kunststoffbasis“ und „Organische Laserdioden“ die Finanzierung meiner Promotionszeit.

Für die fachlichen Diskussionen und Ratschläge danke ich insbesondere Dr. Martina Gerken und Prof. Dr. Georg Bastian.

Meinen Diplomanden Christophe Teiwes-Morin und Thomas Woggon sowie meinen studentischen Hilfskräften Daniela Feth und Michael Schwander danke ich für die tatkräftige Unterstützung meiner Arbeiten.

Ein herzlicher Dank geht an Alexander Colsmann, für den Kampf an der Aufdampf-anlage und dafür das sie immer lief, wenn ich sie brauchte.

Yousef Nazarizadeh danke ich für die Lebensdauermessungen an den Spiro-6-phenyl-Systemen.

Für den sportlichen Ausgleich danke ich der Badmintongruppe bestehend aus Felix Glöckler, Georg Bastian, Sven Schellinger und Martin Punkte. Den beiden letztgenannten danke ich auch für die zahlreichen Saunagänge, welche einen erholten Start in die Woche garantiert haben.

Allen Menschen am LTI danke ich für die gute Arbeitsatmosphäre.

Für die externe Zusammenarbeit in den BMBF-Projekten danke ich Prof. Joseph Salbeck und Michael Fetten vom *mmCmm* in Kassel für die Synthese vieler chemischer Verbindungen. Dr. Andreas Gombert und Dr. Karen Forberich am Fraunhofer ISE in Freiburg danke ich für zahlreiche Lasersubstrate. Für weitere Substrate danke ich Dr. Thomas Weimann und Dr. Jing Wang an der Physikalisch Technischen Bundesanstalt in Braunschweig.

Dr. Stavros Pissadakis und Georg Violakis danke ich für die gute Betreuung und Unterstützung während meines dreiwöchigen Forschungsaufenthaltes auf Kreta. Für die finanzielle Unterstützung danke ich der Europäischen Union im Form von ULF-Forth.

Für zahlreiche Kommentare und Anregungen zu dieser schriftlichen Ausarbeitung danke ich insbesondere Silke Grimminger, Martin Punke, Michael Schwander, Jörg Frochte und Jörg Stroisch.

Zuletzt bedanke ich mich noch recht herzlich bei meinen Eltern für die Unterstützung und meiner Freundin Silke Grimminger, welche großes Verständnis während der zeitintensiven Phasen der Promotion hatte und mir einen großen Rückhalt gibt.

11 Literaturverzeichnis

- [1] E. Yablonovitch: *Inhibited Spontaneous Emission in Solid-State Physics and Electronics*, Physical Review Letters **58** (1987) S. 2059-2062.
- [2] S. John: *Strong Localization of Photons in Certain Disordered Dielectric Superlattices*, Physical Review Letters **58** (1987) S. 2486-2489.
- [3] L. Brown, H. E. LeMay: *Chemie: Ein Lehrbuch für alle Naturwissenschaftler*, VCH (Weinheim), 1998, ISBN 3-527-26241-5
- [4] F. P. Schäfer, B. B. Snavely, C. V. Shank, E. P. Ippen, K. H. Drexhage, T. W. Hänsch: *Dye Lasers*, Topics in Applied Physics **1**, Springer-Verlag (Berlin), 1973, ISBN 3-540-06438-9
- [5] R. Bornemann, U. Lemmer, E. Thiel: *Continuous-wave solid-state dye laser*, Optics Letters **31** (2006) S. 1669-1671.
- [6] J. Eichler, H. J. Eichler: *Laser: Bauformen, Strahlführung, Anwendungen*, 5. Auflage, Springer-Verlag (Berlin), 2003, ISBN 3-540-00376-2
- [7] A.J. Heeger: *Nobel Lecture: Semiconducting and metallic polymers: The fourth generation of polymeric materials*, Reviews of Modern Physics **73** (2001) S. 681-700.
- [8] S. Riechel, C. Kallinger, U. Lemmer, J. Feldmann, A. Gombert, V. Wittwer, U. Scherf: *A nearly diffraction limited surface emitting conjugated polymer laser utilizing a two-dimensional photonic band structure*, Applied Physics Letters **77** (2000) S. 2310-2312.
- [9] G. Heliotis, R.D. Xia, G.A. Turnbull, P. Andrew, W.L. Barnes, I.D.W. Samuel, D.D.C. Bradley: *Emission characteristics and performance comparison of polyfluorene lasers with one- and two-dimensional distributed feedback*, Advanced Functional Materials **14** (2004) S. 91-97.
- [10] U. Scherf, S. Riechel, U. Lemmer, R.F. Mahrt: *Conjugated polymers: lasing and stimulated emission*, Current Opinion in Solid State & Materials Science **5** (2001) S. 143-154.
- [11] V.G. Kozlov, V. Bulovic, P.E. Burrows, M. Baldo, V.B. Khalfin, G. Parthasarathy, S.R. Forrest, Y. You, M.E. Thompson: *Study of lasing action based on Forster energy transfer in optically pumped organic semiconductor thin films*, Journal of Applied Physics **84** (1998) S. 4096-4108.

- [12] M. Amati, F. Lelj: *Luminescent compounds fac- and mer-aluminum tris(quinolin-8-olate)*. A pure and hybrid density functional theory and time-dependent density functional theory investigation of their electronic and spectroscopic properties, *Journal of Physical Chemistry A* **107** (2003) S. 2560-2569.
- [13] S. Riechel, U. Lemmer, J. Feldmann, S. Berleb, A.G. Muckl, W. Brutting, A. Gombert, V. Wittwer: *Very compact tunable solid-state laser utilizing a thin-film organic semiconductor*, *Optics Letters* **26** (2001) S. 593-595.
- [14] J. Salbeck, M. Schorner, T. Fuhrmann: *Optical amplification in spiro-type molecular glasses*, *Thin Solid Films* **417** (2002) S. 20-25.
- [15] N. Johansson, D.A. dosSantos, S. Guo, J. Cornil, M. Fahlman, J. Salbeck, H. Schenk, H. Arwin, J.L. Bredas, W.R. Salaneck: *Electronic structure and optical properties of electroluminescent spiro-type molecules*, *Journal of Chemical Physics* **107** (1997) S. 2542-2549.
- [16] A. Yariv, M. Nakamura: *Periodic Structures for Integrated-Optics*, *Ieee Journal of Quantum Electronics* **13** (1977) S. 233-253.
- [17] H. Kogelnik, C.V. Shank: *Coupled-Wave Theory of Distributed Feedback Lasers*, *Journal of Applied Physics* **43** (1972) S. 2327.
- [18] H. Kogelnik, C.V. Shank: *Stimulated Emission in a Periodic Structure*, *Applied Physics Letters* **18** (1971) S. 152.
- [19] J. D. Joannopoulos, R. D. Meade, J. N. Winn: *Photonic Crystals: Molding the Flow of Light*, Princeton University Press (Princeton), 1995.
- [20] H. Benisty, V. Berger, J. Gérard, D. Maystre, A. Tchelnokov: *Photonic Crystals: Towards Nanoscale Photonic Devices*, Springer-Verlag (Berlin), 2005, ISBN-13 978-3-540-24431-8
- [21] R. G. Hunsperger: *Integrated Optics: Theory and Technology*, Springer Series in Optical Sciences **33**, Springer-Verlag (Berlin), 1982, ISBN 3-540-11667-2
- [22] S. Riechel: *Organic Semiconductor Lasers with two-dimensional distributed feedback*, Universität München, Dissertation, 2002.
- [23] E. Miyai, K. Sakai, T. Okano, W. Kunishi, D. Ohnishi, S. Noda: *Photonics: Lasers producing tailored beams*, *Nature* **441** (2006) S. 946-946.
- [24] S. Noda, M. Yokoyama, M. Imada, A. Chutinan, M. Mochizuki: *Polarization mode control of two-dimensional photonic crystal laser by unit cell structure design*, *Science* **293** (2001) S. 1123-1125.
- [25] G.F. Barlow, K.A. Shore: *Analysis of distributed feedback organic semiconductor lasers*, *Iee Proceedings-Optoelectronics* **147** (2000) S. 61-66.

- [26] A. Seki, M. Ichikawa, N. Suganuma, Y. Tanaka, T. Koyama, Y. Taniguchi: *Organic polymer DBR laser by soft lithography II: Optimization of distributed Bragg reflector*, Journal of Photopolymer Science and Technology **16** (2003) S. 329-334.
- [27] C. Bauer: *Konjugierte Polymere als aktive Materialien in organischen Festkörperlaser*, Dissertation, Universität Marburg, 2002.
- [28] M. Notomi, H. Suzuki, T. Tamamura, K. Edagawa: *Lasing action due to the two-dimensional quasiperiodicity of photonic quasicrystals with a Penrose lattice*, Physical Review Letters **92** (2004) S. 123906.1-4.
- [29] D. Schneider: *Organische Halbleiterlaser*, Universität Braunschweig (TU), Dissertation, 2004.
- [30] D. Wright, E. Brasselet, J. Zyss, G. Langer, W. Kern: *Dye-doped organic distributed-feedback lasers with index and surface gratings: the role of pump polarization and molecular orientation*, Journal of the Optical Society of America B-Optical Physics **21** (2004) S. 944-950.
- [31] T. Riedl, T. Rabe, H.H. Johannes, W. Kowalsky, J. Wang, T. Weimann, P. Hinze, B. Nehls, T. Farrell, U. Scherf: *Tunable organic thin-film laser pumped by an inorganic violet diode laser*, Applied Physics Letters **88** (2006) S. 241116.
- [32] C. Karnutsch, V. Haug, C. Gärtner, U. Lemmer, T. Farrell, B. Nehls, U. Scherf, J. Wang, T. Weimann, G. Heliotis, C. Pflumm, J.C. deMello, D.D.C. Bradley: *Low Threshold Blue Conjugated Polymer DFB Lasers*, Conference on Lasers and Optoelectronics (CLEO), Long Beach, CA, USA (2006) S. CFJ3.
- [33] C. Moormann, J. Bolten, H. Kurz: *Spatial phase-locked combination lithography for photonic crystal devices*, Microelectronic Engineering **73-74** (2004) S. 417-422.
- [34] K. Forberich: *Organische Photonische-Kristall-Laser*, Albert-Ludwigs-Universität Freiburg, Dissertation, 2005.
- [35] T. Ruhl: *Elastomere kolloidale Kristalle aus hart-weichen Kern-Mantel-Latices*, Technische Universität Darmstadt, Dissertation, 2003.
- [36] E. W. Becker, W. Ehrfeld, P. Hagmann, A. Maner, D. Münchmeyer: *Fabrication of microstructures with high aspect ratios and great structural heights by synchrotron radiation lithography, galvanofarming, and plastic moulding (LIGA process)*, Microelectronic Engineering **4** (1986) S. 35-56.
- [37] Die Bilder wurden freundlicherweise von Martin Punke zur Verfügung gestellt.
- [38] A. Pütz: *Nanoimprint von optischen Strukturen*, Studienarbeit, Lichttechnisches Institut der Universität Karlsruhe, 2006.

- [39] M. P. Heinrichs: *Ankopplung organischer Laser an Polymerwellenleiter*, Bachelorarbeit, Lichttechnisches Institut der Universität Karlsruhe, 2006.
- [40] S. Pissadakis, L. Reekie, M.N. Zervas, J.S. Wilkinson: *Excimer laser inscribed submicron period relief gratings in InOx films and overlaid waveguides*, Journal of Applied Physics **95** (2004) S. 1634-1641.
- [41] M.R. Weinberger, G. Langer, A. Pogantsch, A. Haase, E. Zojer, W. Kern: *Continuously color-tunable rubber laser*, Advanced Materials **16** (2004) S. 130-133.
- [42] J.R. Lawrence, Y.R. Ying, P. Jiang, S.H. Foulger: *Dynamic tuning of organic lasers with colloidal crystals*, Advanced Materials **18** (2006) S. 300-303.
- [43] T. Ubukata, T. Isoshima, M. Hara: *Wavelength-programmable organic distributed-feedback laser based on a photoassisted polymer-migration system*, Advanced Materials **17** (2005) S. 1630-1633.
- [44] T. Ubukata, T. Isoshima, M. Hara: *Wavelength programmable organic distributed feedback laser using a photoinduced surface relief grating*, Molecular Crystals and Liquid Crystals **445** (2006) S. 269-273.
- [45] G. Kranzelbinder, E. Toussaere, J. Zyss, A. Pogantsch, E.W.J. List, H. Tillmann, H.H. Horhold: *Optically written solid-state lasers with broadly tunable mode emission based on improved poly (2,5-dialkoxy-phenylene-vinylene)*, Applied Physics Letters **80** (2002) S. 716-718.
- [46] U.G. Lemmer, A.; Salbeck, J.: *Abschlussbericht des Verbundprojektes "Durchstimmbare Photonische Kristall-Laser auf Kunststoffbasis"*, in: (Hannover : Technische Informationsbibliothek u. Universitätsbibliothek., 2006).
- [47] J.M. Drake, M.L. Lesiecki, D.M. Camaioni: *Photophysics and Cis-Trans Isomerization of Dcm*, Chemical Physics Letters **113** (1985) S. 530-534.
- [48] N. Boens, W.W. Qin, N. Basaric, J. Hofkens, M. Ameloot, J. Pouget, J.P. Lefevre, B. Valeur, E. Gratton, M. Vandeven, N.D. Silva, Y. Engelborghs, K. Willaert, A. Sillen, G. Rumbles, D. Phillips, A.J.W.G. Visser, A. van Hoek, J.R. Lakowicz, H. Malak, I. Gryczynski, A.G. Szabo, D.T. Krajcarski, N. Tamai, A. Miura: *Fluorescence lifetime standards for time and frequency domain fluorescence spectroscopy*, Analytical Chemistry **79** (2007) S. 2137-2149.
- [49] R. Harbers, N. Moll, R.F. Mahrt, D. Erni, W. Bachtold: *Enhancement of the mode coupling in photonic-crystal-based organic lasers*, Journal of Optics a-Pure and Applied Optics **7** (2005) S. S230-S234.
- [50] R. Harbers, P. Strasser, D. Caimi, R.F. Mahrt, N. Moll, D. Erni, W. Bachtold, B.J. Offrein, U. Scherf: *Enhanced feedback and experimental band mapping of organic photonic-crystal lasers*, Journal of Optics a-Pure and Applied Optics **8** (2006) S. S273-S277.

- [51] R. Harbers, P. Strasser, D. Caimi, R.F. Mahrt, N. Moll, B.J. Offrein, D. Erni, W. Bachtold, U. Scherf: *Enhanced feedback in organic photonic-crystal lasers*, Applied Physics Letters **87** (2005) S. 151121.
- [52] M. Gerken: *Wavelength Multiplexing by Spatial Beam Shifting in MultilayerThin-Film Structures*, Dissertation, Stanford University, 2003.
- [53] H. Macleod: *Thin-Film Optical Filters*. (Institute of Physics Publishing, London, 2001).
- [54] T. Kavc, G. Langer, W. Kern, G. Kranzelbinder, E. Toussaere, G.A. Turnbull, I.D.W. Samuel, K.F. Iskra, T. Neger, A. Pogantsch: *Index and relief gratings in polymer films for organic distributed feedback lasers*, Chemistry of Materials **14** (2002) S. 4178-4185.
- [55] M. Gaal, C. Gadermaier, H. Plank, E. Moderegger, A. Pogantsch, G. Leising, E.J.W. List: *Imprinted conjugated polymer laser*, Advanced Materials **15** (2003) S. 1165-1167.
- [56] D. Pisignano, L. Persano, P. Visconti, R. Cingolani, G. Gigli, G. Barbarella, L. Favaretto: *Oligomer-based organic distributed feedback lasers by room-temperature nanoimprint lithography*, Applied Physics Letters **83** (2003) S. 2545-2547.
- [57] M. Ichikawa, Y. Tanaka, N. Suganuma, T. Koyama, Y. Taniguchi: *Low-threshold photopumped distributed feedback plastic laser made by replica molding*, Japanese Journal of Applied Physics Part 1-Regular Papers Short Notes & Review Papers **42** (2003) S. 5590-5593.
- [58] **M. Stroisch**, T. Woggon, U. Lemmer, G. Bastian, G. Violakis, S. Pissadakis: *Organic semiconductor distributed feedback laser fabricated by direct laser interference ablation*, Optics Express **15** (2007) S. 3968-3973.
- [59] S. Pissadakis, L. Reekie, M.N. Zervas, J.S. Wilkinson, G. Kiriakidis: *Gratings in indium oxide film overlayers on ion-exchanged waveguides by excimer laser micromachining*, Applied Physics Letters **78** (2001) S. 694-696.
- [60] X.J. Yang, Y.X. Tang, M. Yu, Q.Z. Qin: *Pulsed laser deposition of aluminum tris-8-hydroxyquinoline thin films*, Thin Solid Films **358** (2000) S. 187-190.
- [61] G.A. Turnbull, P. Andrew, W.L. Barnes, I.D.W. Samuel: *Photonic mode dispersion of a two-dimensional distributed feedback polymer laser*, Physical Review B **67** (2003) S. 165107.
- [62] V.K. Shukla, S. Kumar, D. Deva: *Light induced effects on the morphology and optical properties of tris-(8-hydroxyquinoline) aluminium (Alq(3)) small molecular thin film*, Synthetic Metals **156** (2006) S. 387-391.
- [63] Persönliche Email-Korrespondenz mit S. Pissadakis: (2006).

- [64] K. Forberich, A. Gombert, S. Pereira, J. Crewett, U. Lemmer, M. Diem, K. Busch: *Lasing mechanisms in organic photonic crystal lasers with two-dimensional distributed feedback*, Journal of Applied Physics **100** (2006) S. 023110.
- [65] G.A. Turnbull, P. Andrew, W.L. Barnes, I.D.W. Samuel: *Operating characteristics of a semiconducting polymer laser pumped by a microchip laser*, Applied Physics Letters **82** (2003) S. 313-315.
- [66] G. Heliotis, R. Xia, D.D.C. Bradley, G.A. Turnbull, I.D.W. Samuel, P. Andrew, W.L. Barnes: *Two-dimensional distributed feedback lasers using a broadband, red polyfluorene gain medium*, Journal of Applied Physics **96** (2004) S. 6959-6965.
- [67] A.E. Vasdekis, G.A. Turnbull, I.D.W. Samuel, P. Andrew, W.L. Barnes: *Low threshold edge emitting polymer distributed feedback laser based on a square lattice*, Applied Physics Letters **86** (2005) S. 161102.
- [68] K. Forberich, M. Diem, J. Crewett, U. Lemmer, A. Gombert, K. Busch: *Lasing action in two-dimensional organic photonic crystal lasers with hexagonal symmetry*, Applied Physics B-Lasers and Optics **82** (2006) S. 539-541.
- [69] Die REM-Bilder wurden in der Physikalisch Technischen Bundesanstalt (PTB) von T. Weimann und J. Wang aufgenommen.
- [70] W. Braun: *Applied RHEED: Reflection HIGH-Energy Electron Diffraction During Crystal Growth*, Springer Tracts in Modern Physics **154**. Springer-Verlag (Berlin),1999 , ISBN 3-540-65199-3
- [71] M. Meier, A. Dodabalapur, J.A. Rogers, R.E. Slusher, A. Mekis, A. Timko, C.A. Murray, R. Ruel, O. Nalamasu: *Emission characteristics of two-dimensional organic photonic crystal lasers fabricated by replica molding*, Journal of Applied Physics **86** (1999) S. 3502-3507.
- [72] M. Gajdardziska-Josifovska, J.M. Cowley: *Brillouin Zones and Kikuchi Lines for Crystals under Electron Channeling Conditions*, Acta Crystallographica Section A **47** (1991) S. 74-82.
- [73] M. Meier, A. Dodabalapur, J.A. Rogers, R.E. Slusher, A. Mekis, A. Timko, C.A. Murray, R. Ruel, O. Nalamasu: *Emission characteristics of two-dimensional organic photonic crystal lasers fabricated by replica molding*, Journal of Applied Physics **86** (1999) S. 3502-3507.
- [74] G.I. Stegeman, D. Sarid, J.J. Burke, D.G. Hall: *Scattering of Guided-Waves by Surface Periodic Gratings for Arbitrary Angles of Incidence - Perturbation Field-Theory and Implications to Normal-Mode Analysis*, Journal of the Optical Society of America **71** (1981) S. 1497-1507.

-
- [75] C. Karnutsch, **M. Stroisch**, M. Punke, U. Lemmer, J. Wang, T. Weimann: *Laser diode pumped organic semiconductor lasers utilizing two-dimensional photonic crystal resonators*, IEEE Photonics Technology Letters **19** (2007) S.741-743.
- [76] K. Wagatsuma, H. Sakaki, S. Saito: *Mode Conversion and Optical Filtering of Obliquely Incident Waves in Corrugated Waveguide Filters*, Ieee Journal of Quantum Electronics **15** (1979) S. 632-637.
- [77] M. Notomi, H. Suzuki, T. Tamamura: *Directional lasing oscillation of two-dimensional organic photonic crystal lasers at several photonic band gaps*, Applied Physics Letters **78** (2001) S. 1325-1327.
- [78] M. Imada, A. Chutinan, S. Noda, M. Mochizuki: *Multidirectionally distributed feedback photonic crystal lasers*, Physical Review B **65** (2002) S. 195306.1-8
- [79] M. Punke, S. Mozer, **M. Stroisch**, M.P. Heinrich, U. Lemmer, P. Henzi, D.G. Rabus: *Coupling of organic semiconductor amplified spontaneous emission into polymeric single-mode waveguides patterned by deep-UV irradiation*, IEEE Photonics Technology Letters **19** (2007) S. 61-63.
- [80] M. Punke, T. Woggon, **M. Stroisch**, B. Ebenhoch, U. Geyer, C. Karnutsch, M. Gerken, U. Lemmer, M. Bruendel, J. Wang, T. Weimann: *Organic semiconductor lasers as integrated light sources for optical sensor systems*, Proc. SPIE Optics&Photonics (2007) (akzeptiert).

Eigene wissenschaftliche Veröffentlichungen

M. Stroisch, T. Woggon, U. Lemmer, G. Bastian, G. Violakis, S. Pissadakis: *Organic semiconductor distributed feedback laser fabricated by direct laser interference ablation*, Optics Express **15** (2007) S. 3968-3973.

M. Punke, S. Mozer, **M. Stroisch**, M.P. Heinrich, U. Lemmer, P. Henzi, D.G. Rabus: *Coupling of organic semiconductor amplified spontaneous emission into polymeric single-mode waveguides patterned by deep-UV irradiation*, IEEE Photonics Technology Letters **19** (2007) S. 61-63.

M. Punke, S. Mozer, **M. Stroisch**, M. Gerken, G. Bastian, U. Lemmer, D.G. Rabus, P. Henzi, Organic semiconductor devices for micro-optical applications, Proc. SPIE 6185, 618505-1 (2006) (Invited paper).

C. Karnutsch, **M. Stroisch**, M. Punke, U. Lemmer, J. Wang, T. Weimann: *Laser diode pumped organic semiconductor lasers utilizing two-dimensional photonic crystal resonators*, IEEE Photonics Technology Letters **19** (2007) S.741-743.

M. Punke, T. Woggon, **M. Stroisch**, B. Ebenhoch, U. Geyer, C. Karnutsch, M. Gerken, U. Lemmer, M. Bruendel, J. Wang, T. Weimann: *Organic semiconductor lasers as integrated light sources for optical sensor systems*, Proc. SPIE Optics&Photonics (2007) (akzeptiert).

BMBF-Abschlussbericht des Verbundprojektes "Durchstimmbare Photonische Kristall-Laser auf Kunststoffbasis", in: (Hannover : Technische Informationsbibliothek u. Universitätsbibliothek., 2006).

M. Stroisch, M. Gerken, U. Lemmer, K. Forberich, A. Gombert, M. Fetten, J. Salbeck: *Lasertätigkeit in 1- und 2-dimensionalen photonischen Kristallen*, DPG-Tagung in Berlin; 08. März 2005.

K. Forberich, A. Gombert, **M. Stroisch**, U. Lemmer, S. Pereira, K. Busch: *Lasertätigkeit in ein- und zweidimensionalen photonischen Kristallen*, DPG-Tagung, Regensburg, März 2004.

Betreute Diplomarbeiten

C. Teiwes-Morin: *Photonische Kristall-Laser mit optimiertem Wellenleiterdesign*, Diplomarbeit (2005).

T. Woggon: *Lasertätigkeit in organischen Photonischen Kristallen mit Defektmoden*, Diplomarbeit (2006).

B. Ebenhoch: *Interferenzlithografisch erzeugte Photonische-Kristall-Resonatoren für organische Halbleiterlaser*, Diplomarbeit (2007).

12 Abkürzungsverzeichnis

Symbol	Kurzerläuterung
λ_g	Wellenlänge der geführten Moden
λ	Vakuumwellenlänge
λ_{Laser}	Laserwellenlänge
λ_{Bragg}	Bragg-Wellenlänge
β	Propagationskonstante ($\beta = k \cdot n$)
κ	Rückkopplungskonstante
Γ	(optischer) Füllfaktor
A	Gitterperiode
$\alpha(\lambda)$	spektrale Wellenleiterabsorption
ν	Schwingungsniveau
(hk)	Miller'sche Indizes in zwei Dimensionen
$(hk)_L$	zu g_{hk} gehörige Bragg-Linie
$\{g_{mn}\}$	2D-Gittervektoren, welche zu den Bragglinien $\{mn\}_L$ gehören
a	Gitterperiode
a_i	Einheitsvektor im Ortsraum
d	Schichtdicke
G	Gewinn
$g(\lambda)$	spektraler Gewinn
g_{hk}	zur Gittersäule hk gehöriger Gittervektor
G_j	Einheitsvektor im Impulsraum
g_{mod}	modaler Gewinn
h	Strukturtiefe
k	Wellenvektor (der gestreuten Welle)
k_0	Wellenvektor (der einlaufenden Welle)
m	Ordnung des Lasers

<i>n</i>	Brechungsindex
<i>n_{eff}</i>	effektiver Brechungsindex
<i>S_n</i>	n-ter Singulett-Zustand
<i>T_n</i>	n-ter Triplett-Zustand
<i>w</i>	Stegbreite bzw. Säulenradius
<i>AFM</i>	Rasterkraftmikroskop (atomic force microscope)
<i>ASE</i>	amplified spontaneous emission
<i>DBR</i>	Distributed Bragg Reflector
<i>EBL</i>	Elektronenstrahlolithografie
<i>LED</i>	Leuchtdiode
<i>LIA</i>	Laserinterferenzablation
<i>LIGA</i>	Lithografie, Galvanik, Abformung-Prozess
<i>LIL</i>	Laserinterferenzlithografie
<i>REM</i>	Rasterelektronenmikroskop
<i>Alq₃</i>	Aluminium tris-(8-hydroxyquinoline)
<i>Coumarin 153</i>	2,3,6,7-Tetrahydro-9-(trifluoromethyl)-1H,5H,11H-[1]benzopyrano (6,7,8-ij)quinolizin-11-one
<i>DCM</i>	4-dicyanomethylene-2-methyl-6-(p-dimethylaminostyryl)-4H-pyran
<i>DPAVB</i>	1,4-bis(2-(4-(N,N-di(p-tolyl)amino)phenyl)vinyl)benzene (auch als LD1 in der Literatur geführt)
<i>Nd</i>	Neodym
<i>Spiro-6-phenyl</i>	2,2',7,7'-Tetrakis(biphenyl-4-yl)-9,9'-spirobifluorene
<i>Ta₂O₅</i>	Tantalpentoxid
<i>TiO₂</i>	Titandioxid
<i>YVO₄</i>	Yttrium-Vandat

13 Anhang

13.1 Zeitaufgelöster Messaufbau

In Bild 13.1 ist der Messaufbau skizziert, welcher für die Bestimmungen der Lebensdauermessungen in Abschnitt 6.3.3 genutzt wurde. Als Anregungsquelle dient ein modengekoppelter Titan-Saphir-Laser, dessen Emissionswellenlänge im SHG-Kristall auf 380 nm frequenzverdoppelt wird und 2 ps lange Pulse besitzt. Nach einer Aufweitung des Strahls wird dieser im Filterwürfel auf ein Mikroskopobjektiv umgelenkt und auf die Probe fokussiert. Die Photolumineszenz wird vom selben Objektiv eingesammelt und kann den Filterwürfel passieren.

Der Filterwürfel ist so ausgelegt, dass Licht unterhalb von 400 nm und einem Winkel von 45° reflektiert wird. Oberhalb dieser Wellenlänge lässt er das Licht passieren. Zusätzlich besitzt er noch zwei Filter, welche nur eine Anregungswellenlänge durchlassen bzw. diese zum Monochromator hin abblocken.

Die emittierte Strahlung wird im Monochromator spektral zerlegt und auf einen Fotodetektor abgebildet. Die zeitaufgelöste Detektion der Fluoreszenz erfolgt nun mit der Methode des zeitkorrelierten Einzelphotonenzählens. Aus der erhaltenen Messkurve ist schließlich die Lebensdauer bestimmbar.

Die Zeitauflösung ist durch den Fotodetektor auf 45 ps begrenzt.

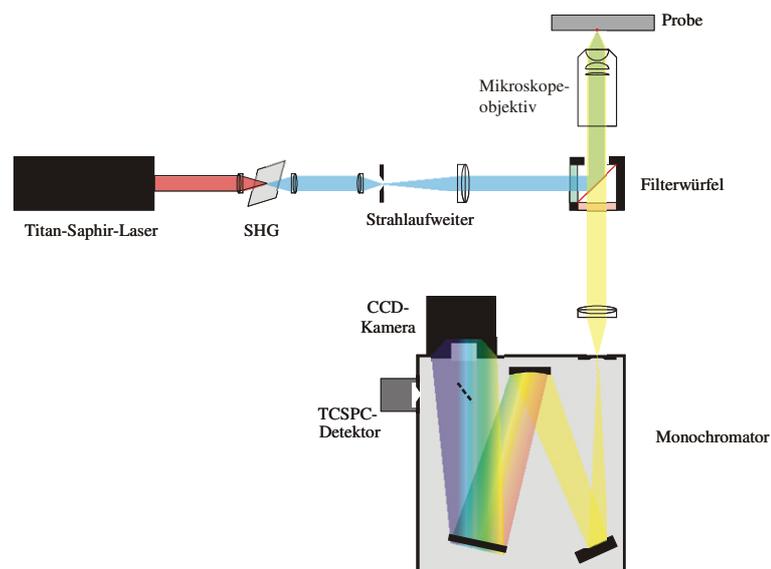


Bild 13.1: Schematischer Aufbau für die zeitaufgelöste Fluoreszenzlebensdauermessung.

13.2 Weitere Daten der homogenen Hochindex-Schichten

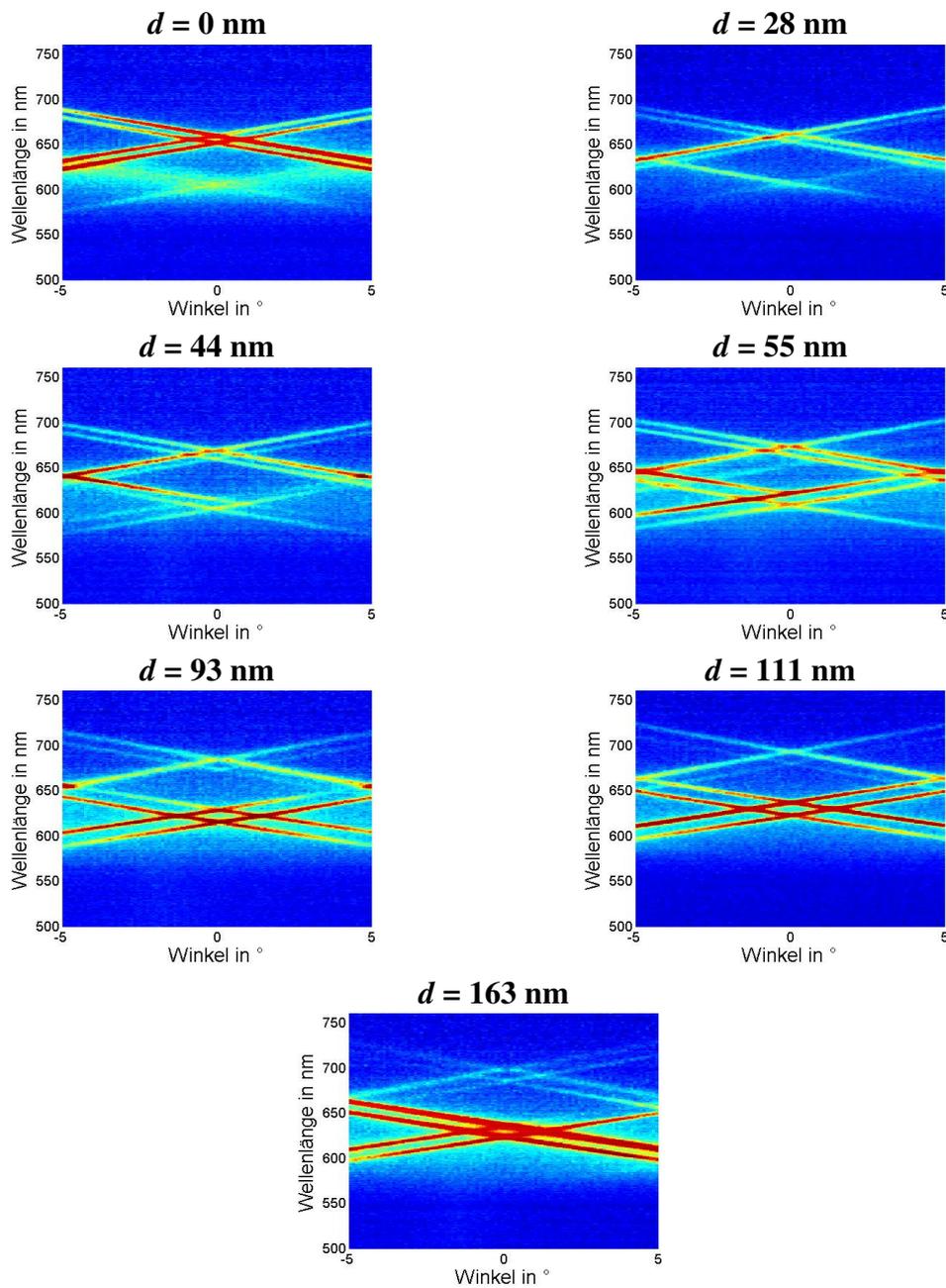


Bild 13.2: Winkelaufgelöste Aufnahme von linearen Substraten mit einer homogenen Tantalpentoxid-Schicht der Dicke d .

Tabelle 13.6: Anregungsflächen und deren zugehörige Durchmesser der Hauptachsen.

<i>Anregungsfläche</i>	<i>Durchmesser Große Achse</i>	<i>Durchmesser Kleine Achse</i>
<i>1,47E-03 cm²</i>	<i>525 nm</i>	<i>356 nm</i>
<i>1,22E-03</i>	<i>449 nm</i>	<i>347 nm</i>
<i>8,53E-04</i>	<i>382 nm</i>	<i>284 nm</i>
<i>6,19E-04</i>	<i>326 nm</i>	<i>242 nm</i>
<i>4,72E-04</i>	<i>275 nm</i>	<i>218 nm</i>
<i>3,43E-04</i>	<i>236 nm</i>	<i>185 nm</i>
<i>1,99E-04</i>	<i>181 nm</i>	<i>140 nm</i>
<i>9,01E-05</i>	<i>121 nm</i>	<i>95 nm</i>

13.3 Laserfächer in eindimensionalen Gittern

Die Auskopplungsmechanismen eindimensionaler Gitter wurden bereits in Abschnitt 3.3.3 beschrieben. An dieser Stelle soll nun das Konzept der Bragg-Streuung auf diese Gitter angewandt werden, um den in Bild 13.3 a) dargestellten und oft beobachteten Laserfächer zu erklären.

Die Reduktion von zwei auf nur eine periodische Richtung lässt aus den Gittersäulen Gitterebenen werden. Diese stehen senkrecht auf der Ebene, welche durch den Wellenleiter vorgegeben ist. Dadurch sind für die Streuung in der Ebene nur diese Schnittlinien interessant. In Bild 13.3 b) ist die Situation für eine zum Gitter leicht schräg verlaufende Mode skizziert. Die Gitterebenen sind im Bild nur angedeutet. Die Situation beschreibt einen Gitterresonator, welcher für die dargestellten Wellenvektoren eine senkrechte Auskopplung zulässt. Jeder Wellenvektor, der an der 0-Linie startet und auf einer Gitterebene endet, kann zurückgestreut werden. Durch den Gittervektor \mathbf{g}_2 wird die Mode innerhalb der Resonatorebene zurückgestreut und die Mode läuft in einer Zickzack-Bewegung durch ihn hindurch. Ist die Mode lange genug im Resonator bzw. im Anregungsgebiet, kann sich Lasertätigkeit bilden. Wird die Lasermode anschließend durch den Gittervektor \mathbf{g}_1 gestreut, koppelt die Mode aus. Dies geschieht aufgrund der Energieerhaltung schräg. Wie dem Bild zu entnehmen ist, bildet sich ein Fächer aus, welcher parallel zum Gitter verläuft. Die schräg auskoppelnden Moden gehören, im Gegensatz zu der senkrecht auskoppelnden Mode, zu einem längeren Wellenvektor. Dies führt dazu, dass sich die Wellenlänge des Fächers mit zunehmender Entfernung von der Mitte ins kurzwellige Spektrum verschiebt. Dies kann bei einem Winkel von circa 11° dazu führen, dass die Wellenlänge von 634 nm auf 630 nm abfällt [22].

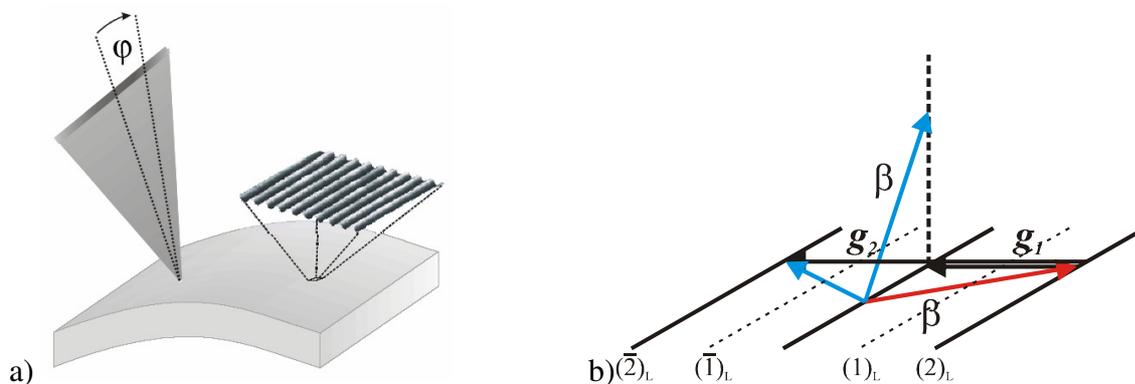


Bild 13.3: a) Laserfächer eines linearen Gitters [22].

b) Schema der Auskopplung eines linearen Gitters im reziproken Raum. Da nur eine Periode in einer Dimension vorliegt, handelt es sich um Gitterebenen. Diese sind nur als schwarze Linien angedeutet, da durch die Wellenleitung eine Schnittebene definiert ist. Die Indizes der Bragg-Ebenen sind entsprechend nur noch einzahlig.

13.4 Umrechnung der Kikuchi-Linien in Winkelkoordinaten

Die Berechnung der Kikuchi-Linien basiert auf elementaren trigonometrischen Funktionen und soll hier vollständigkeithalber angegeben werden. Die Ausgangssituation ist in Bild 13.4 dargestellt. Zur Berechnung der Emissionsrichtung bei einer fixen Wellenlänge wurde der Winkel α variiert.

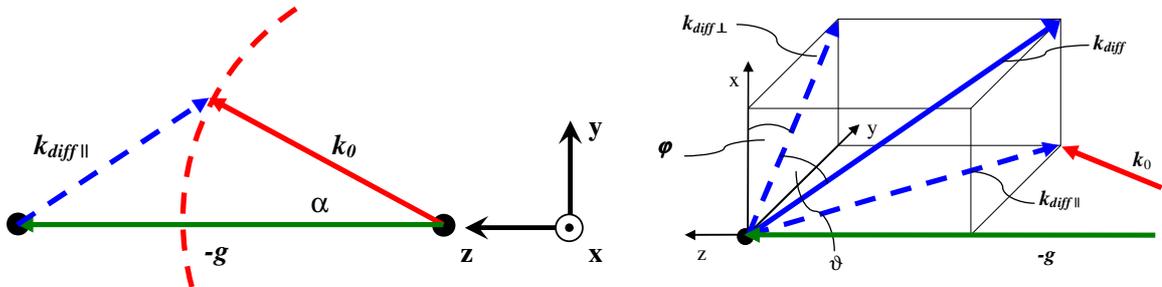


Bild 13.4: a) Situation der beteiligten Vektoren in der Gitterebene. Die Striche innerhalb des Koordinatensystems geben die Richtung des Gitters an.

b) Darstellung des auskoppelnden Vektors k_{diff} und der relevanten Größen.

Benötigt werden die x,y,z-Koordinaten des Vektors k_{diff} , welche anschließend in Polarkoordinaten transformiert werden. Diese kann man in folgender Reihenfolge berechnen, wobei hier nur die skalaren Größen benutzt wurden:

Größe	Berechnung
$k_{diff\parallel}$	$\sqrt{g^2 + k_0^2 - 2 \cdot K \cdot k_0 \cdot \cos \alpha}$
k_{0z}	$k_0 \cdot \cos \alpha$
x	$\sqrt{g^2 - k_{diff\parallel}^2}$
y	$\sin(\alpha) \cdot k_0$
z	$\sqrt{k_{diff\parallel}^2 - y^2} \cdot \text{sign}(k_{0z} - g)$

Zur Transformation in die relevanten Kugelkoordinaten gelten folgende Formeln:

$$\begin{aligned}
 r &= \sqrt{x^2 + y^2 + z^2} \\
 \vartheta &= \begin{cases} \frac{\pi}{2} & \text{auf der positiven } z\text{-Achse} \\ \arcsin \frac{z}{r} & \text{sonst} \end{cases} \\
 \varphi &= \begin{cases} \arctan \frac{y}{x} & \text{für } x > 0, y \geq 0 \text{ I. Quadrant} \\ \arctan \frac{y}{x} + \pi & \text{für } x < 0, y \geq 0 \text{ II. Quadrant} \\ \arctan \frac{y}{x} - \pi & \text{für } x < 0, y < 0 \text{ III. Quadrant} \\ \arctan \frac{y}{x} & \text{für } x > 0, y < 0 \text{ VI. Quadrant} \end{cases} \quad (13.32)
 \end{aligned}$$

13.5 Bandstrukturmessung an quadratischen Gittern

Bild 13.5 a) zeigt die irreduzible Brillouin-Zone mit den drei Hochsymmetriepunkten Γ , X und M eines quadratischen Gitters. Die Γ -X und die Γ -M-Richtungen verlaufen dementsprechend entlang dieser Symmetrieachsen. Um diese Richtungen der Bandstruktur zu untersuchen, kann man die Spektren senkrecht bzw. um 45° gedreht winkelaufgelöst detektieren. Dabei bildet der Γ -Punkt die Koordinate $(0^\circ, 0^\circ)$.

Die Messungen wurden wie im vorigen Abschnitt am Resonator mit einem Säulenradius von 80 nm im Rahmen des Versuches *V350nm* durchgeführt.

Bild 13.5 b) zeigt eine Messung in Γ -X-Richtung. Zu sehen sind insgesamt acht Bänder, wobei das langwelligste Band nur noch schwer zu erkennen ist. Dies liegt daran, dass die Emission vom Alq_3 :DCM bei 630 nm ihr Maximum besitzt und bei 650 nm nur noch schwach emittiert. Bei einem Vergleich der gemessenen Bandstruktur mit theoretischen Berechnungen ähnlicher Strukturen [34] ist derselbe qualitative Verlauf feststellbar. Bei den acht Bändern handelt es sich theoretisch um jeweils vier TE- und TM-Bänder im Wellenleiter. Die Polarisation im Wellenleiter kann aber von der ausgekoppelten abweichen. Dadurch lassen sich die Unterschiede zwischen den in [34] theoretisch berechneten Polarisierungen und der im vorliegenden Fall gemessenen (s. Bild 13.5 c) und d) erklären. In der Konvention, wie sie im Rahmen der Arbeit verwendet wird, handelt es sich in Bild 13.5 c) um die TE-ähnlichen Mode und dementsprechend in Bild 13.5 d) um die TM-ähnlichen.

Wie in Bild 13.5 e) an den roten Bereichen sichtbar ist, emittiert die Lasertätigkeit auf einem TM-ähnlichen Band. Wie in Abschnitt 8.1.4 beschrieben wird, muss es sich aber nicht um das Band handeln, auf dem auch die Lasertätigkeit anschwingt. Dies könnte zum Beispiel erklären, warum die Berechnungen in [34] ein anderes Band für die Lasermode identifiziert haben.

Für die Γ -M-Richtung wurden ebenfalls Polarisationsmessungen senkrecht, waagrecht und um 45° gedreht durchgeführt. Dabei konnte nur eine schwache Polarisationsabhängigkeit festgestellt werden. Dies könnte damit zusammenhängen, dass die Bänder für die TE- und TM-Moden nicht spektral auflösbar waren. Dies würde auch damit übereinstimmen, dass nur vier der sieben in [34] berechneten Bänder beobachtet werden (s. Bild 13.5 f).

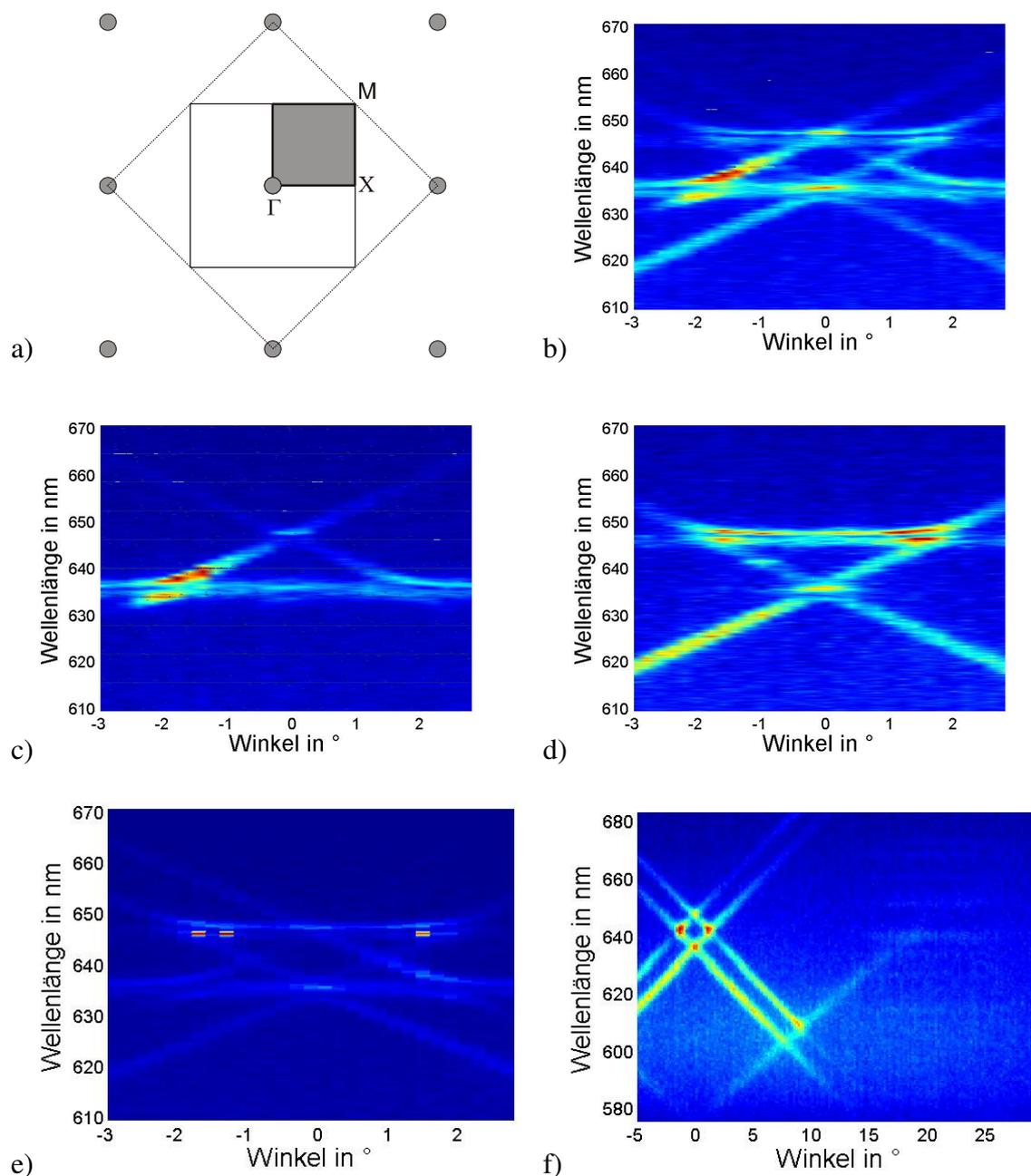


Bild 13.5: a) Darstellung der irreduziblen Brillouin-Zone für ein quadratisches Gitter.

b)-e) Winkelaufgelöste Messung entlang der Γ -X-Richtung. In c) stand ein Polarisator senkrecht zur Achse. Man sieht also die TE-ähnlichen Bänder. In d) sieht man die TM-ähnlichen Bänder, da hier der Polarisator um 90° gedreht war.

f) Winkelaufgelöste Aufnahme entlang der Γ -M-Richtung.

13.6 Weitere Fernfelder quadratischer Resonatoren

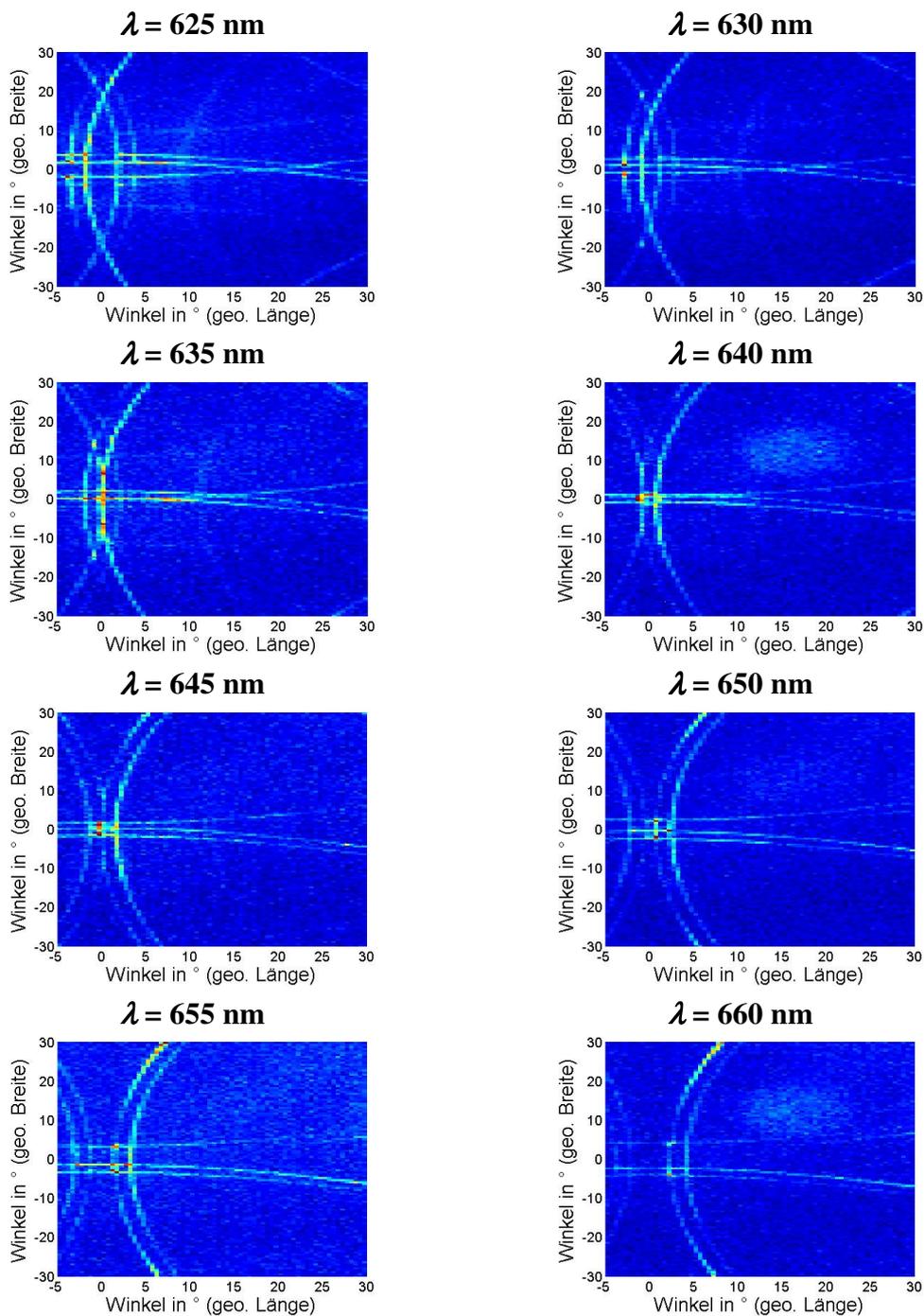


Bild 13.6: Darstellung des Fernfeldes unterhalb der Laserschwelle für verschiedene Wellenlängen λ .

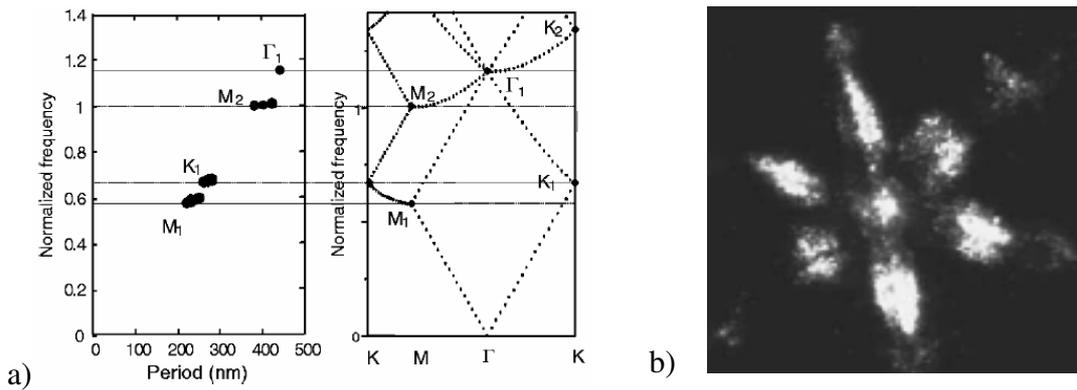


Bild 13.7:a) Experimentelle Ergebnisse (linker Teil) und eine kalkulierte Bandstruktur (rechter Teil) für hexagonale Laserresonatoren [77] (period = Gitterperiode; Normalized frequency = normierte Frequenz).

b) Fernfeld eines hexagonalen Lasers basierend auf interferenzlithografisch hergestellten Gittern ($a = 300 \text{ nm}$) und MeLPPP [68].

13.7 Gitter mit einer Periode von 440 nm

In Abschnitt 8.2 wurden hexagonale Gitter mit einer Periode von 220 nm ausführlich vorgestellt. Erste Untersuchungen mit einer Periode von 440 nm wurden im Rahmen dieser Arbeit begonnen. Insbesondere das Fernfeld birgt noch weiteren Klärungsbedarf, weswegen die Ergebnisse hier im Anhang vorgestellt werden.

13.7.1 Stand der Technik

Für hexagonale Gitter sind die Ergebnisse aus [77] interessant, da die verwendeten Strukturen die Gitterperiode von 440 nm umfassen und als aktives Material $\text{Alq}_3\text{:DCM}$ diente. In Bild 13.7 a) sind nochmals die aus der Veröffentlichung stammende Bandstruktur und die experimentellen Ergebnisse zu sehen. Die normalisierte Frequenz ω_{norm} berechnet sich für eine gegebene Laserwellenlänge λ_l anhand der Formel:

$$\omega_{norm} = \frac{a}{\lambda_l} \cdot n_{eff} \quad (13.33)$$

Für die Gitterperiode a und den effektiven Brechungsindex n_{eff} wurden die experimentellen bzw. aus Wellenleitersimulationen stammenden Werte genommen. Wie in Bild 13.7 a) zu erkennen ist, gehört die Lasertätigkeit bei einer Gitterperiode von 440 nm zum Γ_1 -Punkt. Für diesen Punkt existiert auch die Möglichkeit einer mehrdimensionalen Rückkopplung [78]. Die Ergebnisse weisen auf eine vornehmlich eindimensionale Rückkopplung hin⁹.

⁹ Mit dem Begriff „eindimensional“ ist immer gemeint, dass die Rückstreuung, wie bei einem DFB-Laser, in die entgegengesetzte Richtung vonstatten geht. Im vorliegenden Fall würden somit drei eindimensionale Resonatorrichtungen existieren.

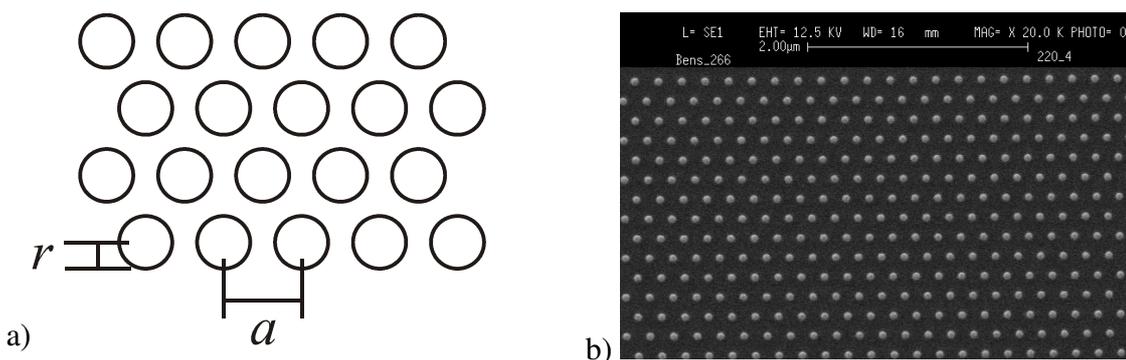


Bild 13.8: a) Schema der verwendeten Strukturen mit der Periode a und dem Säulenradius r .
 b) REM-Aufnahme eines hexagonalen Gitters mit einer Periode von $a = 220 \text{ nm}$ [69].

Für die Deutung der Fernfelder sind besonders die experimentellen und theoretischen Ergebnisse in [68] interessant. Hier wurde ein Fernfeld mit einer sechszähligen Symmetrie beobachtet (s. Bild 13.7 b) und durch semiklassische Simulationen begründet. Man erkennt, dass neben einer senkrechten Auskopplung auch schräg auskoppelnde Bereiche existieren. Diese sind nicht durch Bragg-Reflexionen zu erklären, sondern werden anhand der Simulationen mit flachen Bereichen in der Bandstruktur in Verbindung gebracht. Durch intensive numerische Berechnungen konnte zudem gezeigt werden, dass die Moden nur in hexagonalen Strukturen auftreten.

13.7.2 Probenübersicht

Die Proben bestehen aus elektronenstrahlgeschriebenen Strukturen und sind vom Schichtaufbau identisch mit den quadratischen Gittern (s. Abschnitt 8.1). Ein Schema der Resonatoren sowie eine REM-Aufnahme sind in Bild 13.8 a) und b) zu sehen. Die SiO_2 -Säulen befinden sich auf einem hexagonalen Gitter mit der Periode a und ihre Radien r variieren für die verschiedenen Resonatorfelder. Insgesamt wurden zwei unterschiedliche Perioden mit jeweils sieben Radien untersucht. Tabelle 13.7 gibt einen Überblick über die gewählten Parameter.

Tabelle 13.7: Übersicht der untersuchten Resonatoren mit hexagonaler Geometrie. Neben der Gitterperiode a wurde der Säulenradius r variiert.

a in nm	r in nm						
440	80	100	120	140	160	180	200

Die Schichtdicke der Alq_3 :DCM-Schicht betrug 300 nm, bei einer Dotierkonzentration von 3 mol%.

13.7.3 Rückkoppelungsmechanismen

Das Gitter war im Experiment entsprechend dem Bild 13.8 a) eingebaut. Das reziproke Gitter ist um 30° gedreht. Somit liegen zwei der drei Γ -K-Richtungen waagrecht. Dies wurde für alle weiteren Bilder berücksichtigt.

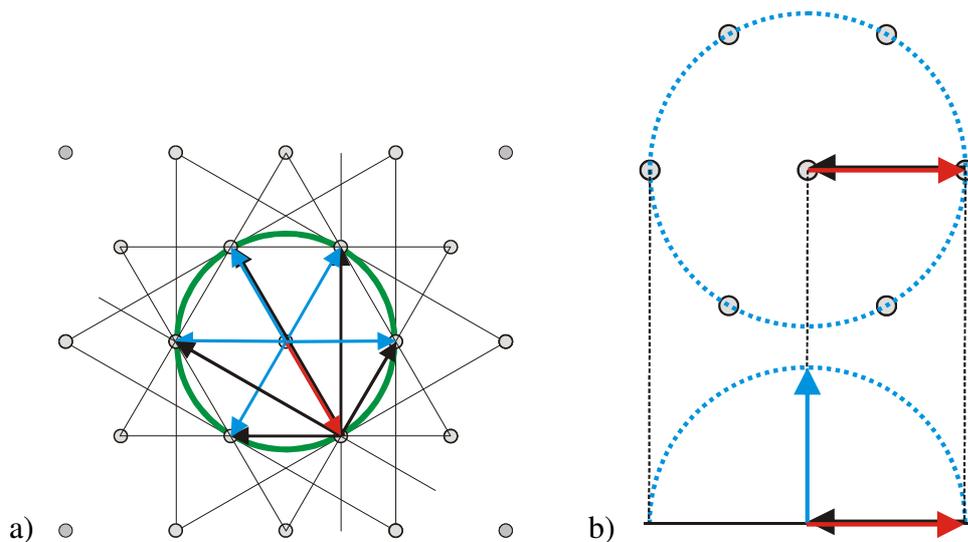


Bild 13.9: Reziproke Darstellung der hexagonalen Gitter für eine Gitterperiode von 440 nm (a). Um die Bilder übersichtlich zu halten, wurden nur die wichtigsten Bragg-Ebenen eingezeichnet. Exemplarisch werden die Streuungen eines einfallenden Wellenvektors (rote Pfeile) durch die Gittervektoren (schwarze Pfeile) mit den zugehörigen resultierenden Vektoren (blaue Pfeile) dargestellt. Die Ewald-Konstruktion ist in (b) zu sehen.

Bei den Resonatoren mit 440 nm Gitterperiode erhält man in denselben Richtungen Schnittpunkte mit Bragg-Ebenen, wie bei den Perioden von 220 nm. Allerdings kann jeder Vektor an fünf verschiedenen Ebenen in unterschiedlichen Richtungen streuen (s. Bild 13.9 a).

Damit die Lasermode nicht aus dem Anregungsgebiet wandert, muss der resultierende Gesamtvektor \mathbf{K} null sein. Dies ist für die Streuung an der $(\bar{2}0)_L$ -Linie gewährleistet. Es handelt sich wieder um einen eindimensionalen Rückkopplungsmechanismus. Die Kopplung mehrerer Vektoren ist auch möglich aber unwahrscheinlicher, weshalb der zweidimensionale Fall vernachlässigt werden kann ([77], [78]).

Im Wesentlichen ist also Streuung an den $\{20\}_L$ -Linien für die Rückkopplung verantwortlich. Diese kann in Bild 13.7 a) dem Γ_1 -Punkt zugeordnet werden.

Die Ewald-Konstruktion in Bild 13.9 b) zeigt zudem, dass eine senkrechte Auskopplung möglich ist. Dadurch kann man das Gitter mit einem eindimensionalen 2. Ordnung DFB-Laser vergleichen.

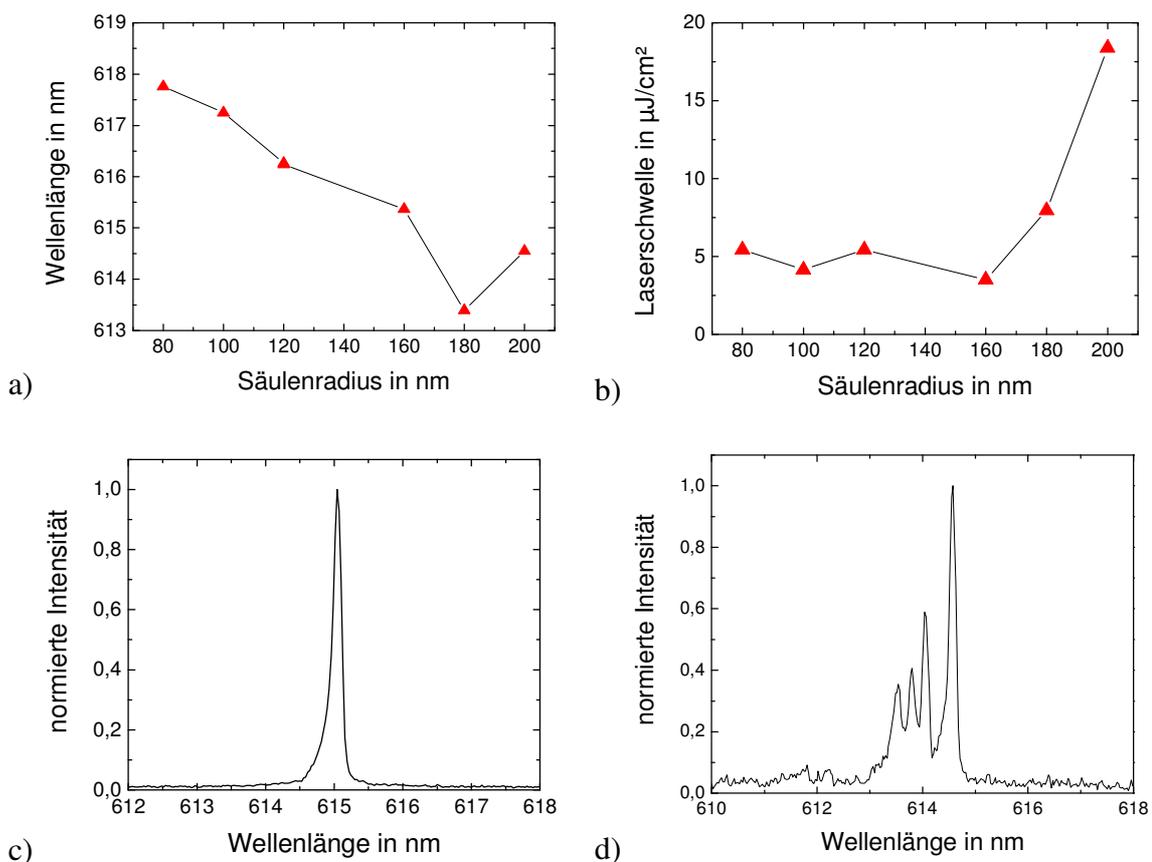


Bild 13.10: a) Laserwellenlänge in Abhängigkeit vom Säulenradius und (b) die zugehörigen Laserschwel­len für hexagonale Gitter mit einer Periode von 440 nm. Laserspektrum für einen Säulenradius von 120 nm (c) und 200 nm (d).

Die Laserwellenlängen der einzelnen hexagonalen Laserfelder mit einer Periode von 440 nm liegen zwischen 613 nm und 618 nm. Wie in Bild 13.10 a) zu erkennen ist, nimmt die Wellenlänge ebenfalls mit steigendem Säulenradius ab. Der Grund dafür wurde bereits bei den hexagonalen Gittern mit 220 nm diskutiert.

Berechnet man mit dem aus Wellenleitersimulationen stammenden effektiven Brechungsindex von 1,62 die normierte Frequenz, erhält man Werte zwischen 1,16 und 1,18. Ein Vergleich dieser Werte mit der normierten Bandstruktur aus [77], welche in Bild 13.7 a) zu sehen ist, bestätigt die Annahme, dass es sich um Lasertätigkeit am Γ_1 -Punkt handelt.

Die Laserschwelle verändert sich bei der Variation der Säulen erst für größere Radien (s. Bild 13.10 b). Hier kann man davon ausgehen, dass durch die Breite der Säulen der Resonator immer mehr einem planaren Wellenleiter ähnelt. Die Modulation kann also zunehmend durch eine konstante Funktion angenähert werden. Dies hat zur Folge, dass die Rückkopplung fällt und die Laserschwelle ansteigt.

Neben dem Anstieg der Laserschwelle ist zudem zu beobachten, dass das Laserspektrum nicht mehr monomodig ist, sondern multimodig wird, wie man in Bild 13.10 c) und d) für die Säulenradien von 120 nm und 200 nm sieht. Dieses Verhalten

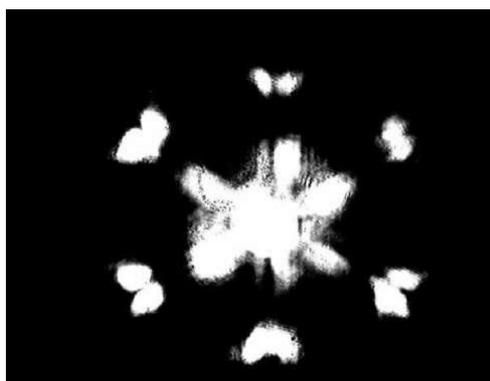


Bild 13.11: Fernfeld eines Resonators mit 160 nm Säulenradius.

wurde auch bei den quadratischen Gittern beobachtet und kann ebenfalls mit dem Anschwingen der Lasermoden an verschiedenen Bändern begründet werden. In [78] wurde beschrieben, dass die Lasertätigkeit auf unterschiedlichen Bändern eines hexagonalen Gitters anschwingen kann.

Es sei nochmals darauf hingewiesen, dass meistens nur eine Lasermode anschwingt, weil das zugehörige Band die höchste Resonatorgüte Q aufweist und somit die Laserschwelle am geringsten ist. Bei Steigerung der Pumpleistung können entsprechend auch die anderen Bänder anschwingen.

13.7.4 Fernfelder

Bei den Fernfeldaufnahmen stand an der Stelle der Detektionsoptik ein Umlenkspiegel (Aufbau s. Bild 5.1), welcher das Fernfeld entweder auf einen Projektionsschirm oder direkt in eine Kamera abgebildet hat. Die farbigen Bilder entstanden durch das Fotografieren des Projektionsschirms mit einer Digitalkamera, während die schwarz-weiß Bilder direkt mit einer CCD-Kamera aufgenommen wurden.

Für einen Laserresonator mit einem Säulenradius von 160 nm ist das Fernfeld in Bild 13.11 zu sehen. Abweichend von der in Abschnitt 13.7.3 vorhergesagten senkrechten Auskopplung existieren noch 6 weitere Laserpunkte. Dieses Fernfeld konnte auch in [68] beobachtet werden. Es stammt nicht von weiteren Bragg-Reflexionen, sondern von einem flachen Gebiet in der Bandstruktur, welches nicht am Γ -Punkt ist.

Für diese Proben wurde zusätzlich der Anregungsort von links nach rechts über das Resonatorfeld verschoben und die Fernfelder aufgenommen. Die Aufnahmen sind zusammen mit einem Schema des reziproken Gitters in Bild 13.12 a) und b) zu sehen. Für den Fall, dass die linke Seite des Resonatorfeldes gepumpt wird (blaue Fläche), erhält man in senkrechter Resonatorrichtung eine größere angeregte Fläche als in waagerechter Richtung. Dies symbolisieren die roten Doppelpfeile in Bild 13.12 b). Im Fernfeld wird also die durch diese Vorzugsrichtung entstandene und anschließend ausgekoppelte Lagertätigkeit stärker hervortreten. Es zeigt sich, dass in diesem Fall nur der mittlere Teil des ursprünglichen Fernfeldes sichtbar ist. Daraus kann man schluss-

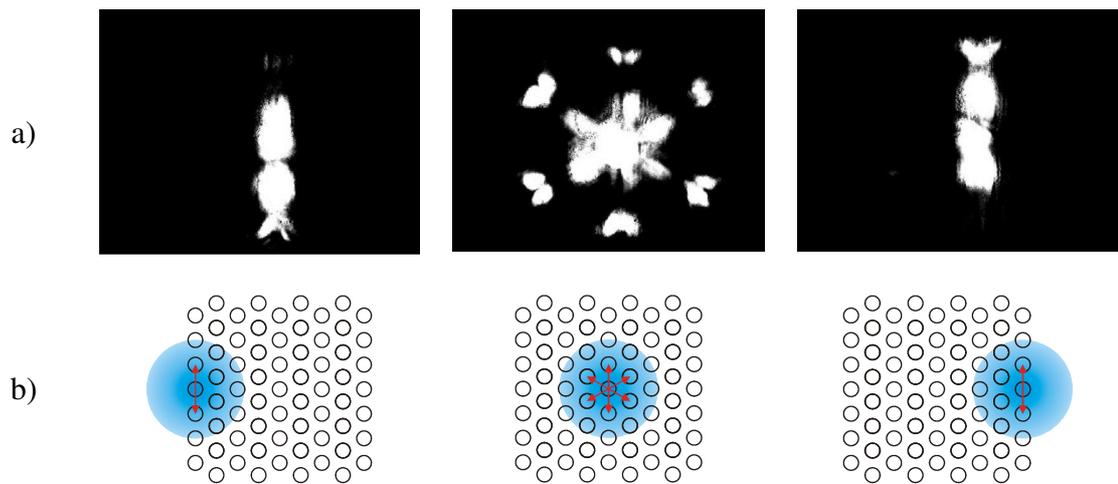


Bild 13.12: Fernfelder eines hexagonalen Gitters in Abhängigkeit von der Anregungsfläche. (a) Fernfelder für eine $\text{Alq}_3\text{:DCM}$ -Schicht von 300 nm. (b) Schematische Darstellung im reziproken Raum. Die blaue Fläche symbolisiert die Anregungsfläche und die roten Doppelpfeile die bevorzugten Rückkopplungsrichtungen.

folgen, dass die Auskopplung parallel zur Rückkopplung verläuft. Bei Anregung in der Resonatormitte entsteht das gewohnte Fernfeld. Bei Anregung an der rechten Seite des Resonators entsteht ein ähnliches Bild wie für die linke Anregung.

13.8 Gitter mit einer rechteckigen Symmetrie

Ein weiteres untersuchtes Gitter basiert auf dem im vorherigen Abschnitt vorgestellten hexagonalen Gitter. Im Unterschied zu diesem Gitter sind Säulen, welche auf einem quadratischen Gitter liegen, nicht vorhanden. Die genaue Anordnung ist auf der REM-Aufnahme und einer schematischen Zeichnung im Ortsraum in Bild 13.13 a) und b) zu sehen. Durch das Fehlen der Säulen handelt es sich bei der kleinsten Einheitszelle nicht mehr um ein hexagonales Gitter, sondern um ein rechteckiges Gitter mit einer Basis bestehend aus drei Säulen (grüne Punkte). Die Länge der Gittervektoren beträgt $\mathbf{a}_1 = 880 \text{ nm} \cdot \mathbf{e}_x$ und $\mathbf{a}_2 = 780 \text{ nm} \cdot \mathbf{e}_y$ (blaue Pfeile).

Das „Grundgerüst“ der rechteckigen Resonatoren entspricht dem hexagonalen Gitter mit einer Periode von 440 nm. Deshalb werden in der Auswertung die Daten aus Abschnitt 13.7 noch einmal aufgegriffen. (Es handelt sich jeweils um die roten Dreiecke in den relevanten Diagrammen.) Der Säulenradius r deckt diesmal den Bereich von 40 nm bis 160 nm ab.

Die aktive Laserschicht besteht wieder aus 300 nm Alq₃:DCM mit einer 3 molprozentigen Dotierung.

13.8.1 Rückkopplungsmechanismen

Für die Betrachtung der Bragg-Reflexionen im reziproken Raum ist das Gitter verantwortlich. Deshalb sind in Bild 13.14 nur die Gitterpunkte ohne Basis dargestellt. Zudem ist ein grüner Ring eingezeichnet, welcher durch seine Breite Wellenvektoren mit einer Vakuumwellenlänge $\lambda_0 = 600\text{-}660 \text{ nm}$ und einem effektiven Brechungsindex $n_{\text{eff}} = 1,58\text{-}1,66$ entspricht. Der Durchmesser wirkt im Vergleich zu den hexagonalen Gittern größer, da die Gittervektoren im Ortsraum länger und die reziproken Vektoren damit kürzer sind.

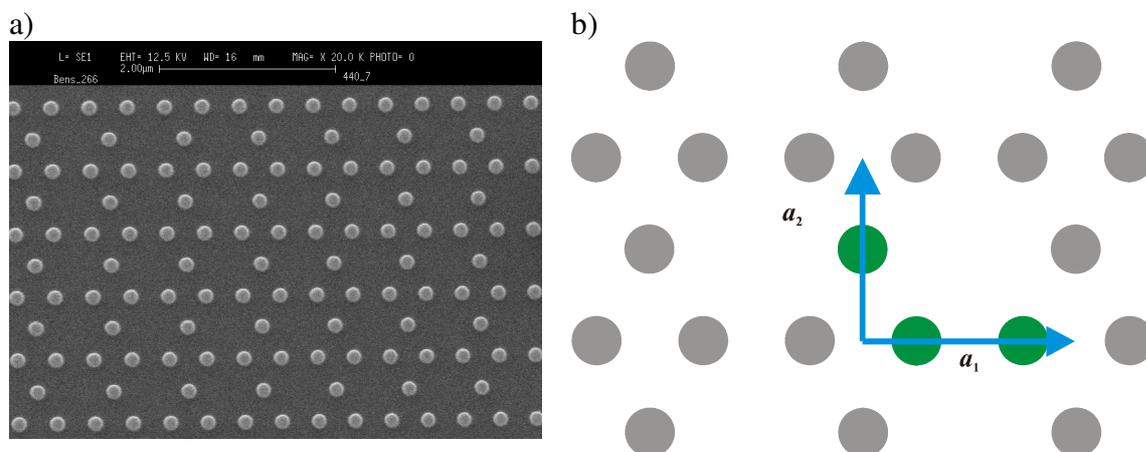


Bild 13.13: a) REM-Aufnahme eines verwendeten Gitters mit rechteckiger Symmetrie[69].

b) Schema des Gitters im Ortsraum. Die beiden Basisvektoren \mathbf{a}_1 und \mathbf{a}_2 sind als blaue Pfeile eingezeichnet. Die „dreiatomige“ Basis ist grün angedeutet.

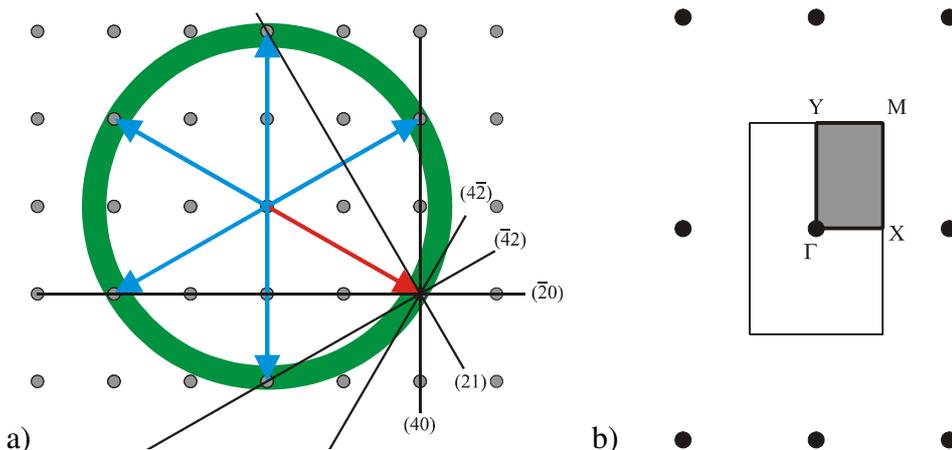


Bild 13.14: a) Gitter mit rechteckiger Symmetrie im Impulsraum. Dargestellt ist ein einfallender Wellenvektor (roter Pfeil) mit den zugehörigen potenziellen gestreuten Vektoren (blaue Pfeile) und den zugehörigen Bragg-Linien. Der grüne Kreis gibt alle in Frage kommenden Wellenvektoren wieder.

b) Irreduzible Brillouin-Zone des Rechteckgitters.

Berücksichtigt man, dass für eine effektive Rückkopplung die Mode so gestreut werden muss, dass sich ein Gesamtwellenvektor \mathbf{K} von null ergibt, erhält man sechs Rückkopplungsrichtungen. Die zugehörigen Wellenvektoren enden, wie in Bild 13.14 a) zu sehen ist, jeweils auf einem Gitterpunkt und sind 60° zueinander gedreht. Wie ebenfalls im Bild zu erkennen ist, kann jeder einfallende Wellenvektor (roter Pfeil) an fünf verschiedenen Bragg-Linien in jeweils eine andere Richtung gestreut werden (blaue Pfeile). Dabei spielt im konkreten Fall die Reflexion an der $(4\bar{2})_L$ -Linie eine besondere Rolle, da der beteiligte Gittervektor und der resultierende Vektor parallel verlaufen. Das heißt, es liegt wieder eine eindimensionale gegenläufige Rückkopplung vor. Betrachtet man die Rückkopplungsrichtungen im Ortsraum, gehören diese zu einer Gitterperiode von 780 nm. Dies entspricht einem DFB-Laser 4. Ordnung.

Wie bei den hexagonalen Gittern ist auch eine Kopplung mehrerer Vektoren möglich, um die Bedingung eines verschwindenden Gesamtwellenvektors zu erreichen. Die Vermutung liegt aber auch hier nahe, dass eine Kopplung von mehreren Wellenvektoren unwahrscheinlicher ist als eine von zwei Vektoren. Deswegen wird diese Möglichkeit im Folgenden vernachlässigt.

Ein Blick auf alle sechs Vektoren zeigt, dass senkrechte Rückkopplung an den beiden $\{40\}_L$ -Linien und die anderen Rückkopplungen an den $\{42\}_L$ -Linien erfolgen (meisten Linien sind nicht im Bild eingezeichnet).

Für die Auskopplung kommen insgesamt elf verschiedene Richtungen in Frage. Darunter ist auch die senkrechte Auskopplung. Die Berechnungen der Auskopplungswinkel der anderen Richtungen ergeben, dass diese Reflexe nicht mehr von der Linse im Versuchsaufbau eingesammelt werden können.

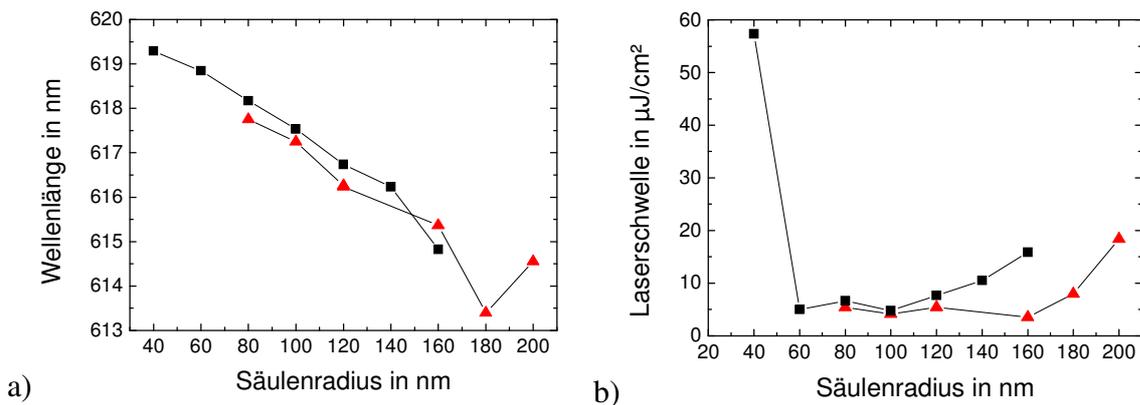


Bild 13.15: Laserwellenlängen (a) und Laserschwelen (b) in Abhängigkeit vom Säulenradius für Gitter mit rechteckiger (schwarze Quadrate) und hexagonaler Symmetrie (rote Dreiecke).

13.8.2 Laserschwelen und –wellenlängen

In Bild 13.15 a) ist die Laserwellenlänge gegenüber den Säulenradien aufgetragen. Wie bei den hexagonalen Gittern nimmt die Wellenlänge ab, je größer die Radien werden. Dieses Verhalten kann, wie bei den anderen Gittertypen, mit dem steigenden Volumenanteil der Säulen und dem dadurch geringer werdenden effektiven Brechungsindex begründet werden. Im Vergleich zu den hexagonalen Gittern ergibt sich lediglich eine leichte Verschiebung ins langwellige Spektrum. Dies kann mit den fehlenden Säulen und dem damit verbundenen geringeren Volumenanteil des Substrates begründet werden.

Bei der Betrachtung der Laserschwelen in Bild 13.15 b) ist ein Minimum erkennbar, welches zwischen den Säulenradien von 60 nm bis 100 nm liegt. Der Anstieg zum kleinsten Radius hin kann darauf zurückgeführt werden, dass der Resonator immer mehr dem Grenzfall eines homogenen Wellenleiters ähnelt. Das bedeutet, dass die Rückkopplung abnimmt und die Laserschwelle ansteigt. Für die größeren Radien steigt die Laserschwelle, im Vergleich zu den hexagonalen Gittern, früher an. Anscheinend verringert sich die Rückkopplung bei den rechteckigen Gittern schneller. Betrachtet man die einzelnen Richtungen als lineare Gitter, bedeutet eine Periode von 780 nm, dass es sich um einen Laser 4. Ordnung handelt. Diese weisen im Allgemeinen niedrigere Rückkopplungskoeffizienten als 1. Ordnung oder 2. Ordnung Laser, auf. Je nach Größe des Resonators und der Anregungsfläche kann sich dies in der Laserschwelle niederschlagen. Es ist naheliegend, dass dies auch hier der Fall ist.

13.8.3 Fernfelder

Entsprechend dem Bild 13.16 ist das Fernfeld für die rechteckigen Gitter abhängig von den Anregungsleistungen. So sind bei geringeren (a) fünf und bei höheren (b) Leistungsdichten sieben Laserpunkte zu erkennen. Wie bei den hexagonalen Gittern erhält man für die höheren Dichten eine sechszählige Symmetrie. Die äußeren Punkte bilden also wieder ein gleichschenkliges Sechseck. Das Fehlen der zwei senkrechten

äußeren Punkte bei niedrigen Energien führt dagegen zu einer Rechtecksymmetrie. Dieser Effekt könnte in Zusammenhang mit den Rückkopplungsmechanismen stehen. So wurde bereits in Abschnitt 13.8.1 festgestellt, dass für die senkrechte Rückkopplungsrichtung Bragg-Reflexionen an den beiden $\{40\}_L$ -Bragg-Linien verantwortlich sind. Die anderen Richtungen basieren dagegen auf den vier $\{42\}_L$ -Linien. Dies hieße dann, dass die Rückkopplung in diese vier Richtungen stärker bzw. wahrscheinlicher ist.

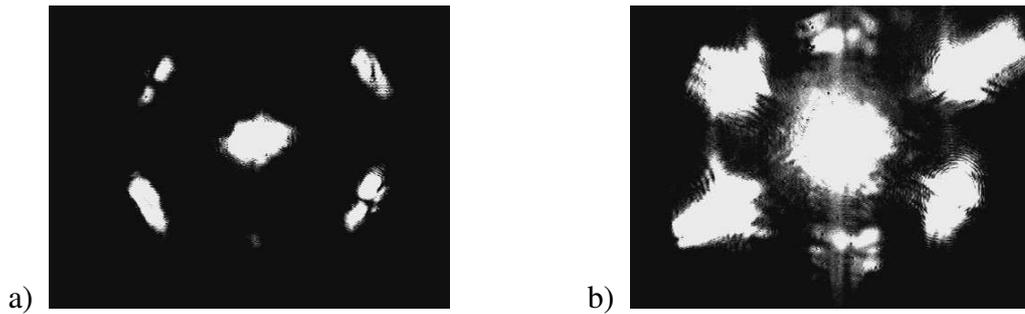


Bild 13.16: Fernfelder von Resonatoren mit rechteckiger Symmetrie und einem Säulenradius von 120 nm. Bei niedrigen Anregungsenergien (a) treten fünf Laserpunkte auf. Bei höheren Energien (b) dagegen sieben.

14 Lebenslauf

Name:	Marc Stroisch
Geburtsdatum:	05. September 1975
Geburtsort:	Essen
Staatsangehörigkeit:	deutsch
1982 – 1986	Besuch der Johann-Peter-Hebel-Grundschule in Essen
1986 – 1995	Besuch des Gymnasiums-Essen-Überruhr mit Abschluss der allgemeinen Hochschulreife.
Juli 1995 – Juli 1996	Wehrersatzdienst bei der Caritas Essen im mobilen sozialen Hilfsdienst (MSHD)
Oktober 1996 – September 2002	Studium der Physik an der GHS-Universität Essen
November 2002 – Dezember 2002	wissenschaftlicher Mitarbeiter der GHS-Universität Essen
Januar 2003 – März 2007	wissenschaftlicher Mitarbeiter des Lichttechnischen Instituts (LTI) der Universität Karlsruhe (TH)
Februar 2006	Dreiwöchiger Forschungsaufenthalt an dem <i>Institute of Electronic Structure and Laser (IESL)</i> der <i>Foundation for Research and Technology - Hellas (FORTH)</i> auf Kreta in Griechenland. EU-Projektname: " <i>Fabrication of organic DFB lasers by direct laser ablation in Alq₃:DCM layers</i> "