Bragg-Gitter für das Lichtmanagement in

organischen Leuchtdioden

Zur Erlangung des akademischen Grades eines

DOKTOR-INGENIEURS

von der Fakultät für

Elektrotechnik und Informationstechnik des Karlsruher Instituts für Technologie (KIT)

genehmigte

Dissertation

von **Dipl.-Phys. Julian Hauß** geb. in Freudenstadt

Tag der mündlichen Prüfung: 18. November 2014

Hauptreferent: Prof. Dr. Uli Lemmer Korreferent: Prof. Dr. Martina Gerken

DOI 10.5445/IR/1000048742

Kurzfassung

Organische Leuchtdioden (OLEDs) sind heute insbesondere in kommerziellen Display-Produkten weit verbreitet. Durch zahlreiche technologische Fortschritte hinsichtlich ihrer Effizienz und Langlebigkeit werden OLEDs zunehmend auch für Anwendungen in der Allgemeinbeleuchtung interessant. Als flächige Leuchtmittel ermöglichen sie eine Vielzahl neuer und kreativer Möglichkeiten in diesem Bereich. Speziell bei der Lichtauskopplung besteht jedoch noch ein erhebliches Potential, die Effizienz von OLEDs weiter zu steigern. So können bei einer herkömmlichen OLED ohne spezielle Auskoppelstrukturen nur etwa 20% des im Bauteil generierten Lichtes die OLED als nutzbares Licht verlassen.

Diese Arbeit befasst sich mit dem Einsatz von Bragg-Gittern für das Lichtmanagement in organischen Leuchtdioden. Das Hauptaugenmerk liegt dabei auf der Auskopplung von geführten Wellenleitermoden in den organischen Schichten und der Anode der OLEDs. Zum einen werden OLEDs mit geätzten Gitterstrukturen auf der Oberseite der ITO-Anode¹ untersucht. Zum anderen wird auf die ITO-Schicht ein dünnes Goldgitter aufgebracht. Zusätzlich zur Auskopplung von Wellenleitermoden erlauben es diese Strukturen, die Abstrahlung über Microcavity-Effekte zu beeinflussen und Substratmoden gezielt auszukoppeln. Neben der Diskussion experimenteller Ergebnisse wird das Bauteilverhalten zudem anhand von T-Matrix²-, FDTD³- und Setfos⁴-Simulationen analysiert. Die Bragg-Gitter werden im Rahmen dieser Arbeit mittels Laserinterferenzlithographie und Ätz- beziehungsweise Lift-off-Verfahren hergestellt. Alle verwendeten Prozesse lassen sich somit bis hin zu großflächigen kommerziellen Anwendungen skalieren.

Für die Untersuchung von Bragg-Gittern auf der Oberseite der ITO-Anodenschicht werden ein- und zweidimensionale Gitter mit verschiedenen Perioden hergestellt und in OLEDs aus kleinen Molekülen integriert. Der Vergleich der Messungen mit T-Matrix-Simulationen erlaubt die Zuordnung einzelner Maxima zu bestimmten geführten Moden in den OLEDs sowie qualitative Rückschlüsse auf die Auskoppeleffizienz einzelner Moden. Mit der FDTD-Methode werden OLEDs mit eindimensionalen Bragg-Gittern simuliert und der Einfluss der Ausrichtung der Emitter sowie ihrer Position relativ zum Gitter untersucht. Der Einfluss der Gittertiefe auf die Auskopplung und die Gesamteffizienz wird sowohl experimentell als auch mit Hilfe der FDTD-Methode analysiert.

¹ITO: Indiumzinnoxid

²T-Matrix: Transfer-Matrix

³FDTD: Engl. für finite-difference time-domain

⁴Setfos: Software der Firma Fluxim

Anhand von Polymer-OLEDs werden Goldgitter auf der ITO-Anode untersucht. Die Höhe der Goldgitter beeinflusst ihre Reflektivität und damit die Microcavity der OLEDs. Dies wirkt sich direkt auf die Verteilung der Emission in nutzbares Licht, Substratmoden und geführte Wellenleitermoden aus und führt zudem zu einer Veränderung des Emissionsspektrums. Mit der Gitterperiode steht neben der Dicke der Goldschicht ein zweiter unabhängiger Parameter zur Beeinflussung der Bauteilemission zur Verfügung. Über diesen lässt sich der Auskoppelwinkel der Wellenleitermoden einstellen. Durch die Kombination dieser Effekte ergibt sich bei den untersuchten Bauteilen eine um 25-30% erhöhte Leistungseffizienz. Neben der Beeinflussung der optischen Bauteileigenschaften kann durch die anodenseitigen Goldgitter auch der Flächenwiderstand der Anode gesenkt werden, was für großflächige oder ITO-freie OLEDs von großem Interesse ist.

Auf Basis von OLEDs mit Goldgittern werden zudem Einkoppeleffekte in Wellenleitermoden untersucht. Dazu werden zwei OLED-Typen betrachtet, die sich lediglich in den Dicken der Emitterschichten und Goldgitter unterscheiden. Im ersten OLED-Typ wird Auskopplung aus einer Wellenleitermode in den Bereich nutzbaren Lichtes beobachtet. Im zweiten kommt es zu einer Einkopplung in die Wellenleitermode. Das Einbringen von Gittern bewirkt somit nicht notwendigerweise eine Erhöhung der Auskoppeleffizienz der Bauteile. Insbesondere für OLEDs, in denen sich mehrere Moden ausbilden können, ist dies von großer Relevanz.

Wie sich in den Experimenten in dieser Arbeit zeigt, ist die Modenabsorption im Bauteil ein limitierender Faktor für eine effiziente Auskopplung von Wellenleitermoden. Um den Einfluss der Absorption auf die Auskopplung näher zu untersuchen, werden OLED-ähnliche, vereinfachte Bauteile hergestellt, deren Emittermaterial optisch angeregt wird. Der Aufbau der Bauteile erlaubt es, die Modenabsorption kontrolliert durch Beimischen eines Absorbers in eine Polyvinylalkohol-Schicht zu variieren. Dadurch kann der Einfluss verschiedener Absorptionskoeffizienten auf die Modenauskopplung gezielt analysiert werden.

Inhaltsverzeichnis

1	Einl	eitung	J	1
	1.1	Organi	ische Leuchtdioden	1
	1.2	Motiva	ation: Das Problem der Lichtauskopplung in OLEDs	3
	1.3	Gliede	erung	4
2	Gru	ndlage	en	7
	2.1	Organi	ische Halbleiter	7
		2.1.1	Klassifizierung organischer Halbleiter	9
		2.1.2	Ladungstransport in organischen Halbleitern	10
		2.1.3	Optische Eigenschaften organischer Halbleiter	11
	2.2	Organi	iische Leuchtdioden	13
		2.2.1	Aufbau und Funktionsweise	13
		2.2.2	Generelle Effizienzbetrachtungen	15
	2.3	Optisc	che Eigenschaften und Auskoppeleffizienz von OLEDs	17
		2.3.1	Betrachtung im Rahmen der geometrischen Optik	17
		2.3.2	Optische Verlustkanäle	18
		2.3.3	Füllfaktoren	24
		2.3.4	Microcavity-Effekte und Besetzung der Moden in OLEDs	25
	2.4	Bragg-	-Streuung von geführten Moden in OLEDs	26
3	Mat	erialier	n, Herstellungsprozesse und Messmethoden	29
	3.1	Verwe	endete Materialien	29
		3.1.1	OLED-Typen	29
		3.1.2	Substrat und Elektroden	30
			3.1.2.1 Substrat	30
			3.1.2.2 Anode: ITO	30
			3.1.2.3 Kathode	30
		3.1.3	Polymer-OLEDs	31
			3.1.3.1 Lochinjektions- und Lochtransportschicht: PEDOT:PSS	31
			3.1.3.2 Emitter: Super Yellow	32
		3.1.4	OLEDs aus kleinen Molekülen	32
			3.1.4.1 Emitterschicht Alq ₃ :DCM \ldots	32

Inhaltsverzeichnis

		3.1.4.2 Transport- und Blockschichten	2
	3.2	Herstellungsprozesse	4
		3.2.1 Vorbereitungs- und Reinigungsprozesse	4
		3.2.2 Aufschleudern	4
		3.2.3 Thermisches Verdampfen	5
		3.2.4 Verkapselung	6
		3.2.5 Laserinterferenzlithographie zur Herstellung von Bragg-Gittern 3'	7
	3.3	Messaufbauten und Bauteilcharakterisierung	8
		3.3.1 Strahlungsleistung und Kennlinie	8
		3.3.2 Spektral- und winkelaufgelöste Elektrolumineszenz	9
		3.3.3 Spektral- und winkelaufgelöste Photolumineszenz 4	1
л	Sim	ulationsmotheden d	2
4		Transfer Matrix Methode	2
	4.1	A 1 1 Grundlagen der T-Matrix-Methode	ן ג
		4.1.1 Orundragen der 1-infantik-infendede \dots den Schichtgrenzen	2
		4.1.1.2 Matrix-Formalismus	5
		4.1.2 Anwendung der T-Matrix-Methode 4'	7
		$4.1.2$ All wendung der Fridarik Methode \dots \dots \dots \dots \dots \dots \dots 4	, 7
		4122 Grenzen der Methode	, 0
	4.2	Finite-Differenzen-Methode im Zeitbereich	0
	1.2	4.2.1 Grundlagen der FDTD-Methode	1
		4.2.1.1 Update-Gleichungen 5	1
		4.2.1.2 Diskretisjerung und Stabilität	3
		4.2.1.3 Randbedingungen	4
		4.2.1.4 Weitere Eigenschaften der FDTD-Methode	5
		4.2.2 FDTD-Simulation von OLEDs	5
	4.3	SETFOS	9
5	Bra	gg-Gitter in ITO-Anoden 6 ⁻	1
	5.1	Herstellung	1
		5.1.1 OLED-Herstellung	2
		5.1.2 Gitterherstellung	3
		5.1.3 Gittercharakterisierung	5
	5.2	Experimentelle Ergebnisse	7
	5.3	T-Matrix-Simulationen	9
	5.4	FDTD-Simulationen	5
	5.5	Gittertiefe und Bauteileffizienz	3

Inhaltsverzeichnis

		5.5.1 Variation der Gittertiefe	93
		5.5.2 Betrachtung der Gesamteffizienz	95
	5.6	Zusammenfassung und Diskussion	95
6	Met	Illische Bragg-Gitter für Lichtmanagement in OLEDs	101
	6.1	Herstellung	101
		6.1.1 Herstellung der Gitter	101
		6.1.2 OLED-Herstellung	103
	6.2	Experimentelle Ergebnisse und Simulation	105
	6.3	Zusammenfassung	109
7	Aus	und Einkopplung durch Bragg-Gitter	113
	7.1	Probendesign und Herstellung	114
	7.2	Messergebnisse und Simulation	115
	7.3	Zusammenfassung und Ausblick	122
			122
8	Мос	enabsorption und Auskopplung	123
8	Moc 8.1	enabsorption und Auskopplung Probendesign	123 123
8	Moc 8.1 8.2	enabsorption und Auskopplung Probendesign Herstellung	123 123 124
8	Moc 8.1 8.2 8.3	enabsorption und Auskopplung Probendesign Herstellung Experimentelle Ergebnisse	123 123 124 126
8	Moc 8.1 8.2 8.3	enabsorption und Auskopplung Probendesign Herstellung Experimentelle Ergebnisse 8.3.1 Charakterisierung der Absorberschicht	123 123 124 126 126
8	Moc 8.1 8.2 8.3	enabsorption und Auskopplung Probendesign Herstellung Statistic Regebnisse 8.3.1 Charakterisierung der Absorberschicht 8.3.2	123 123 124 126 126 127
8	Moc 8.1 8.2 8.3 8.4	enabsorption und Auskopplung Probendesign Herstellung Statistic Base Base	123 123 124 126 126 127 128
8	Moc 8.1 8.2 8.3 8.4 Zus	enabsorption und Auskopplung Probendesign Herstellung Experimentelle Ergebnisse 8.3.1 Charakterisierung der Absorberschicht 8.3.2 Photolumineszenzmessungen Zusammenfassung ammenfassung und Ausblick	123 123 124 126 126 127 128 131
8 9 Lii	Moc 8.1 8.2 8.3 8.4 Zus	enabsorption und Auskopplung Probendesign Herstellung Experimentelle Ergebnisse 8.3.1 Charakterisierung der Absorberschicht 8.3.2 Photolumineszenzmessungen Zusammenfassung ammenfassung und Ausblick	 123 123 124 126 126 127 128 131 137
8 9 Li ⁱ	Moc 8.1 8.2 8.3 8.4 Zus teratu	enabsorption und Auskopplung Probendesign Herstellung Experimentelle Ergebnisse 8.3.1 Charakterisierung der Absorberschicht 8.3.2 Photolumineszenzmessungen Zusammenfassung ammenfassung und Ausblick Irverzeichnis	 123 123 124 126 126 127 128 131 137 155

1 Einleitung

Nach vielen Jahren Grundlagenforschung im Bereich organischer Halbleiter, ist es heutzutage möglich, eine Vielzahl optoelektronischer Bauelemente aus organischen Halbleitermaterialien herzustellen. Der Reiz organischer Halbleiter besteht zum einen darin, dass sich ihre elektronischen und optischen Eigenschaften durch gezielte chemische Synthese maßschneidern lassen. Zum anderen verspricht man sich von organischen Materialien Halbleiterbauelemente, die großflächig und kostengünstig aus der Flüssigphase hergestellt werden können.

Neben der Entwicklung von organischen Solarzellen, Fotodetektoren, Transistoren oder Lasern haben insbesondere die rasanten Fortschritte im Bereich organischer Leuchtdioden (OLEDs) in den letzten Jahren viel Aufsehen erregt. Mittlerweile ist es möglich, OLEDs mit einer sehr hohen internen Quanteneffizienz herzustellen. Allerdings kann bei herkömmlichen OLEDs nur ein geringer Teil des in den Bauteilen generierten Lichtes diese als nutzbares Licht verlassen. Es ist daher notwendig, die Auskoppeleffizienz durch ein effizientes Lichtmanagement in den Bauteilen zu erhöhen. Eine vielversprechende Möglichkeit, die Lichtauskopplung aus OLEDs signifikant zu erhöhen, ist die Verwendung von Bragg-Gittern. Diese werden im Rahmen der hier vorgestellten Arbeit eingehend untersucht. Auf die Problematik der Lichtauskopplung und auf Bragg-Gitter wird im zweiten Abschnitt dieses einleitenden Kapitels näher eingegangen. Im folgenden Abschnitt wird zunächst die historische Entwicklung organischer Leuchtdioden bis zum heutigen Stand der OLED-Technologie dargestellt. Der letzte Abschnitt dieses Kapitels vermittelt einen Überblick über die Struktur und die einzelnen Kapitel der vorliegenden Arbeit.

1.1 Organische Leuchtdioden

Die Elektrolumineszenz organischer Materialien wurde in den 50er Jahren des letzten Jahrhunderts zum ersten Mal demonstriert [1, 2]. In den 1960er Jahren gab es die ersten erfolgreichen Experimente mit elektrolumineszenten organischen Bauteilen, deren Funktionsweise heutigen OLEDs gleicht [3–5]. Bedingt durch die verwendeten, relativ dicken Anthracen-Kristalle lagen die Betriebsspannungen all dieser Bauteile jedoch noch zwischen 50 V und 2000 V. Bereits seit Beginn der 1970er Jahre wurden organische Fotoleiter in Kopiergeräten eingesetzt. Die kommerzielle Verwendung organischer Materialien in lichtemittierenden Bauteilen sollte jedoch noch einige Jahrzehnte dauern. Ein wichtiger Schritt für die organische Elektronik war die Entdeckung der Dotierung von organischen Molekülen in den Jahren 1977/78 [6–8], wofür im Jahre 2000 der Nobelpreis für Chemie vergeben wurde. Durch Dotierung können seitdem Leitfähigkeiten und Ladungsträgerkonzentrationen von organischen Materialien gezielt beeinflusst werden. Die erste effiziente Dünnschicht-OLED mit zwei organischen Aufdampfschichten wurde im Jahre 1987 vorgestellt [9]. Im Jahre 1990 gelang es dann, die erste OLED aus dünnen Polymerschichten zu bauen [10] und erstmals eine OLED mit einer Doppelheterostruktur herzustellen, mit der sich der Ladungsträgerfluss im Bauteil optimieren lässt [11]. Da beim Einsatz von fluoreszenten Emittermaterialien die interne Quanteneffizienz auf lediglich 25 % beschränkt ist [12], kam es Ende der 1990er Jahre zur verstärkten Suche nach effizienten phosphoreszenten Emittern. Mit diesen lässt sich mittlerweile nahezu 100 % interne Quanteneffizienz erreichen [13–16]. Der Einsatz von dotierten Schichten und der Aufbau von OLEDs in einer p-i-n-Struktur brachte weitere Effizienzsteigerungen, insbesondere durch eine verbesserte Ladungsträgerinjektion [17–19].

Heutzutage ist der Einsatz von OLED-Displays in Consumer-Produkten, allen voran in Smartphones, weit verbreitet [20, 21]. Bereits Anfang der 2000er Jahre waren Geräte wie mp3-Player mit ersten kleinen Passiv-Matrix-Displays kommerziell erhältlich [22]. Ab 2007 wurden dann erstmals Smartphones mit Aktiv-Matrix-OLED-Displays ausgestattet [23]. Ende 2007 wurde der erste OLED-Fernseher mit 11" Bilddiagonale vorgestellt und beeindruckte zum einen durch seine Bildqualität und zum anderen durch seine schlanke Bauform [24]. OLED-Displays haben Vorteile wie potentiell geringe Kosten, eine dünne und leichte Bauform, hohe Helligkeit und hoher Kontrast aus nahezu jedem Blickwinkel sowie schnelle Schaltzeiten. Darüber hinaus sind sie durch ihre selbstleuchtenden Pixel sehr energieeffizient. Für das Jahr 2014 verspricht man sich im Bereich der OLED-Displays ein weltweites Marktvolumen von ca. 18 Mrd. § [25]. Neben ihrem Einsatz im Display-Markt erhofft man sich von OLEDs vor allem kommerzielle Erfolge im Bereich der Allgemeinbeleuchtung [26-30]. Für das Jahr 2025 sagen optimistische Szenarien ein weltweites Marktvolumen für Beleuchtungsprodukte auf OLED-Basis von bis zu 1,9Mrd. \$ voraus [31]. OLEDs als kostengünstige Flächenstrahler, die sich in nahezu jeder Bauform herstellen lassen, eröffnen vielfältige Möglichkeiten in der Beleuchtungstechnik [32, 33]. Neben neuartigen Formen für Desingerleuchten denkt man hierbei zum Beispiel an Leuchttapeten, transparente Lichtwände oder flächige Leuchthimmel für die Innenraumbeleuchtung [32]. Bereits seit einigen Jahren lassen sich mit OLEDs Lichtausbeuten erreichen, die mit Leuchtstofflampen vergleichbar sind [34]. Mit 139lm/W erzielte Konica Minolta Mitte 2014 die bislang höchste Lichtausbeute bei OLEDs [35]. Sowohl für Displays als auch für Beleuchtungsanwendungen sind Entwicklungen wie transparente oder flexible OLEDs sehr interessant und versprechen neue und innovative Produkte [36, 37].

Den genannten Vorteilen stehen aber auch Herausforderungen gegenüber. Das größte technologische Problem stellt sicher die durch Degradation begrenzte Lebensdauer von insbesondere blau emittierenden OLEDs dar [38–40]. Neben technologischen und materialspezifischen Problemen ist aber vor allem die effiziente Auskopplung des generierten Lichtes aus OLEDs noch nicht zufriedenstellend gelöst und Gegenstand aktueller Forschung [41, 42]. Die Problematik der Lichtauskopplung ist die Motivation für die vorliegende Arbeit und wird im folgenden Abschnitt eingehender behandelt.

1.2 Motivation: Das Problem der Lichtauskopplung in OLEDs

OLEDs werden bereits heute als energieeffiziente und potentiell kostengünstige Lichtquellen angesehen [32]. Bei einer herkömmlichen OLED ohne spezielle Auskoppelstrukturen können jedoch nur etwa 20% des im Bauteil generierten Lichtes die OLED als nutzbares Licht verlassen [43–45]. Verdeutlicht man sich, dass ca. 20% des globalen Bedarfs an elektrischer Energie durch die Beleuchtung verursacht wird, so wird deutlich, welch großes Potential zur Energieeinsparung und Ressourcenschonung hier schlummert [46]. Im Gegensatz zu anorganischen LEDs sind OLEDs flächige Leuchtmittel. Dome und makroskopische Auskoppelstrukturen wie bei herkömmlichen LEDs sind daher auf großflächige OLEDs nicht übertragbar. Es müssen daher Lösungen oder Strukturen zur Lichtauskopplung gefunden werden, die mit dem flächigen Charakter von OLEDs und ihrer geringen Dicke vereinbar sind. Hier bieten sich Mikro- oder Nanostrukturen an, die sich großflächig und kostengünstig herstellen lassen.

In OLEDs verbleibt ohne weitere Maßnahmen ein Großteil des erzeugten Lichtes in den organischen Schichten und der Anodenschicht als geführte Wellenleitermoden. Die organischen Schichten bilden dabei zusammen mit der transparenten Anode die Hochindexschichten eines Schichtwellenleiters. Ein weiterer signifikanter Anteil des Lichtes kann zwar in das OLED-Substrat gelangen, dieses jedoch nicht verlassen. Die Auskopplung aus dem Substrat lässt sich durch eine Strukturierung der Substrataußenseite beeinflussen und ist weithin untersucht [41, 47]. Zudem kann sie unabhängig von der eigentlichen OLED-Herstellung durch eine Behandlung des Substrats erfolgen. Die Auskopplung der geführten Moden in OLEDs erfordert Auskoppelstrukturen nahe an oder innerhalb der organischen Schichten und ist deshalb ungleich herausfordernder. In Abbildung 1.1 ist ein Überblick über verschiedene Strukturierungsmöglichkeiten gegeben. Eine effiziente Auskopplung ergibt sich insbesondere für Strukturen, die oberhalb oder unterhalb der Anode eingebracht werden [48]. In Abbildung 1.1(a) sind niedrigbrechende Mikrostrukturen dargestellt, welche auf die Anode aufgebracht werden [49, 50]. Abbildung 1.1(b) zeigt Streupartikel in der Anode und den organischen Materialien [51]. In Abbildung 1.1(c) ist der Ansatz dargestellt, der in dieser Arbeit untersucht wurde. Es handelt sich dabei um Bragg-Gitter-Strukturen auf der Anodenoberseite. Diese Strukturen weisen Periodizitäten im Bereich der Wellenlänge des sichtbaren Lichtes auf und führen zur Auskopplung der geführten Moden durch kohärente Streuung, die auch Bragg-Streuung genannt wird [52– 54]. Im Gegensatz zu den beiden anderen Verfahren lässt sich durch die Bragg-Streuung der Auskoppelwinkel des Lichtes über die Gitterperiode einstellen. Neben ihrer Wirkung auf geführte Wellenleitermoden können mit Bragg-Gittern auch Substratmoden ausgekoppelt werden. Durch die geschickte Wahl des Materials der Gitter kann zudem die Abstrahlung der OLED über



 Abb. 1.1: Überblick über verschiedene Strukturierungsmöglichkeiten zur Auskopplung von geführten Wellenleitermoden. Eine effiziente Auskopplung ergibt sich insbesondere für Strukturen, die oberhalb oder unterhalb der Anode eingebracht werden [48]. (a) Niedrigbrechende Mikrostrukturen, welche auf die Anode aufgebracht werden. (b) Streupartikel in der Anode und den organischen Materialien. (c) Bragg-Gitter-Strukturen auf der Anodenoberseite, wie sie in dieser Arbeit untersucht wurden.

Microcavity-Effekte beeinflusst werden (siehe hierzu Kapitel 6). Als Herstellungsverfahren für die Bragg-Gitter diente in dieser Arbeit die Laserinterferenzlithographie (LIL) in Kombination mit Ätz- bzw. Lift-off-Verfahren. Die LIL-Methode zur Gitterherstellung wurde gewählt, weil sie sich auch auf großen Flächen bis hin zu industriellen Maßstäben anwenden lässt [55] und somit die eingangs erwähnten Kriterien für mögliche Strukturierungsverfahren bestens erfüllt.

1.3 Gliederung

Diese Arbeit ist in folgende Kapitel gegliedert. Kapitel 2 behandelt die Grundlagen organischer Halbleiter und organischer Leuchtdioden. Dabei werden insbesondere die optischen Verlustkanäle in OLEDs und die daraus resultierende limitierte Auskoppeleffizienz sowie die Grundlagen der Bragg-Streuung diskutiert. In Kapitel 3 werden die Materialien und Prozesse erläutert, die bei der Herstellung der Bragg-Gitter und der OLEDs zum Einsatz kamen. Zudem werden auch die Messmethoden und Charakterisierungsmessplätze beschrieben, die im Rahmen dieser Arbeit aufgebaut und verwendet wurden. Die Grundlagen der verwendeten Simulationsmethoden werden in Kapitel 4 erläutert. Neben den grundlegenden Eigenschaften der T-Matrix und FDTD-Methode werden auch deren Besonderheiten und ihre Anwendbarkeit bei der Simulation von OLEDs diskutiert. Darüber hinaus wird auf die Software Setfos der Firma Fluxim eingegangen, die speziell für die Simulation von unstrukturierten OLEDs ausgelegt ist.

In den folgenden Kapiteln 5 und 6 werden die Ergebnisse zweier verschiedener Ansätze für anodenseitige Bragg-Gitter präsentiert, mit denen Licht aus OLEDs ausgekoppelt werden kann. Kapitel 5 behandelt Bragg-Gitter in ITO-Anoden von Aufdampf-OLEDs aus kleinen Molekülen, die als Auskoppelstrukturen für Wellenleitermoden fungieren. Zusätzlich zu experimentellen Ergebnissen werden auch T-Matrix- und FDTD-Simulationen der Bauteile diskutiert. In Kapitel 6 werden anodenseitige metallische Bragg-Gitter untersucht, die sich generell für das Lichtmanagement in OLEDs eignen. Sie verbinden die Auskopplung von Wellenleitermoden mit der Auskopplung von Substratmoden und mit Microcavity-Effekten. Mittels der durchgeführten T-Matrix- und Setfos-Simulationen können die verschiedenen auftretenden Effekte voneinander unterschieden und erklärt werden. Die Kapitel 7 und 8 greifen zwei wichtige limitierende Aspekte bei der Lichtauskopplung auf. In Kapitel 7 wird die Einkopplung in Wellenleitermoden durch Bragg-Gitter untersucht, die der inverse Prozess zur Auskopplung ist. In Kapitel 8 werden Experimente vorgestellt, die den Einfluss der Modenabsorption auf die Lichtauskopplung aus Wellenleitermoden in OLEDs demonstrieren. In Kapitel 9 werden die Ergebnisse der Arbeit zusammengefasst und ein Ausblick gegeben.

2 Grundlagen

In diesem Kapitel werden die Grundlagen organischer Leuchtdioden behandelt. Es werden zunächst die Materialklasse der organische Halbleiter sowie deren optische und elektronische Eigenschaften diskutiert. Anschließend werden der Aufbau und die Funktionsweise organischer Leuchtdioden erläutert. Im dritten Abschnitt dieses Kapitels wird auf die optischen Eigenschaften organischer Leuchtdioden eingegangen und die Problematik der Lichtauskopplung in OLEDs diskutiert, welche die Motivation für diese Arbeit darstellt. Der letzte Abschnitt behandelt die Bragg-Streuung zur Auskopplung von geführten Moden in OLEDs und damit das Wirkprinzip der in dieser Arbeit vorgestellten periodischen Auskoppelstrukturen.

2.1 Organische Halbleiter

Organische Halbleiter gehören zur Klasse der ungesättigten Kohlenwasserstoffverbindungen. Ungesättigt bedeutet, dass es in diesen Molekülen Doppel- oder Dreifachbindungen zwischen benachbarten Kohlenstoffatomen gibt, was zur Ausbildung sogenannter π -Elektronensysteme führt. Die Materialien, die in dieser Arbeit verwendet wurden, zeichnen sich speziell durch alternierende Einfach- und Doppelbindungen aus. Diese werden als konjugierte π -Elektronensysteme bezeichnet und sind der Grund für die speziellen elektrischen und optischen Eigenschaften der organischen Halbleiter [56–58].

Das Ethen-Molekül ist das einfachste Molekül mit einem π -Elektronensystem aufgrund einer C=C-Doppelbindung (siehe Abbildung 2.1(a)). Im Folgenden werden an diesem Beispiel die Eigenschaften der Doppelbindung bzw. der π -Elektronensysteme erläutert. Atomarer Kohlenstoff im Grundzustand liegt in der Elektronenkonfiguration $1s^22s^22p^2$ vor (siehe Abbildung 2.1(b)). Im gebundenen Zustand bilden die 2s- und 2p-Orbitale jedoch Hybridorbitale aus. Im Falle des Ethens liegt eine sogenannte sp^2 -Hybridisierung vor. Dies bedeutet, dass sich pro Kohlenstoffatom aus einem 2s- und zwei 2p-Orbitalen drei $2sp^2$ -Orbitale ausbilden. Zudem liegt ein weiteres nicht hybridisiertes $2p_z$ -Orbitale vor (siehe Abbildung 2.1(c)). Durch Überlagerung der sp^2 -Orbitale mit den 1s-Orbitalen von Wasserstoffatomen bzw. einem sp^2 -Orbital eines anderen Kohlenstoffatoms ergeben sich die σ -Bindungen bzw. σ -Molekülorbitale des Ethens. Neben den σ -Bindungen gehen die beiden C-Atome noch eine π -Bindung ein, die sich aus der Überlagerung der nicht-hybridisierten $2p_z$ -Orbitale in einer schematisierten räumlichen Darstellung. In Abbildung 2.2(b) ist das Energieniveauschema eines Moleküls mit konjugierten



Abb. 2.1: (a) Strukturformel von Ethen, (b) Elektronenkonfiguration des Kohlenstoffatoms im Grundzustand, (c) sp²-Hybridisierung der Kohlenstofforbitale.



Abb. 2.2: (a) Orbitale bzw. Bindungen im Ethenmolekül in schematischer, räumlicher Darstellung (adaptiert aus Referenz [59]). (b) Energieniveauschema eines Moleküls mit konjugierten π -Elektronensystemen.

 π -Elektronensystemen zu sehen. Durch Kopplung der atomaren Zustände zweier C-Atome spalten sich diese jeweils in bindende (π, σ) und antibindende (π^*, σ^*) Zustände (Orbitale) auf. Da alle bindenden Zustände besetzt sind und die π -Bindung schwächer ist als die σ -Bindungen, bestimmt die Aufspaltung zwischen π und π^* die Energielücke zwischen dem höchsten besetzten Molekülorbital (Highest Occupied Molecular Orbital, HOMO) und dem niedrigsten unbesetzten Molekülorbital (Lowest Unoccupied Molecular Orbital, LUMO) [60, 61]. Diese Energiedifferenz ist somit bei ungesättigten Verbindungen deutlich kleiner als bei gesättigten Verbindungen, die keine π -Bindungen aufweisen, und liegt typischerweise bei 1,5 bis 3eV, wodurch optische Anregungen im sichtbaren Spektralbereich möglich sind [57].

In organischen Halbleitern liegen konjugierte π -Elektronensysteme mit alternierenden Doppelund Einfachbindungen vor (siehe Abbildung 2.3). Dadurch bilden die $2p_z$ -Orbitale auf dem Molekül delokalisierte π -Elektronensysteme aus. Diese delokalisierten Zustände und die Energielücke zwischen HOMO und LUMO sind verantwortlich für die halbleitenden Eigenschaften dieser Verbindungen und bestimmen die elektrischen und optischen Eigenschaften der Materialien ähnlich wie Valenz- und Leitungsband dies bei anorganischen Halbleitern tun. Ein Hauptvorteil organischer Halbleiter gegenüber anorganischen Halbleitern besteht darin, dass sich die



Abb. 2.3: (a) Strukturformel des konjugierten Polymers Poly(p-Phenylen-Vinylen) (PPV), (b) Strukturformel des kleinen Moleküls Pentacen (adaptiert aus Referenz [59]).

Energielücke zwischen HOMO und LUMO durch gezielte chemische Synthese der Moleküle beeinflussen lässt und somit die elektrischen und optischen Materialeigenschaften maßgeschneidert werden können [57].

2.1.1 Klassifizierung organischer Halbleiter

Es gibt zwei Hauptklassen von organischen Halbleitermaterialien, die auch beide in dieser Arbeit eingesetzt wurden: Kleine Moleküle und konjugierte Polymere. Im Folgenden werden die spezifischen Eigenschaften der beiden Molekülklassen erläutert.

Konjugierte Polymere

Konjugierte Polymere sind langkettige Moleküle mit konjugierten Doppelbindungen, die durch eine Aneinanderreihung von einigen 10 bis zu mehreren 100.000 Monomereinheiten entstehen. Idealerweise wären die konjugierten π -Elektronensysteme über das ganze Molekül delokalisiert. In der Realität liegen die Moleküle jedoch meist geknickt bzw. verdreht vor und weisen typische Konjugationslängen von unter 10 Monomereinheiten auf [56, 62, 63]. Dies stört die Ausbildung makroskopischer Wellenfunktionen, hindert den Ladungstransport entlang der Kette und führt schließlich zu einer verminderten Leitfähigkeit [64, 65]. In Abbildung 2.3(a) ist beispielhaft die Strukturformel des konjugierten Polymers Poly(p-Phenylen-Vinylen) (PPV) gezeigt.

Neben den optischen und elektrischen Eigenschaften konjugierter Polymere lässt sich unter anderem auch ihre Löslichkeit durch chemische Synthese bzw. durch den Einsatz geeigneter Seitengruppen beeinflussen. Dies ist von besonderer Bedeutung für die Verarbeitung vieler Materialien, da sie wegen ihrer geringen thermischen Stabilität aus der Lösung verarbeitet werden müssen. Dabei kommen üblicherweise Verfahren wie Aufschleudern [66], Rakeln [67] oder Drucken [36, 68] zum Einsatz.

Kleine Moleküle

Kleine Moleküle bilden die zweite große Klasse organischer Halbleiter. Ihr Molekulargewicht ist wesentlich geringer als das der Polymere, aber auch sie besitzen konjugierte π -Elektronensysteme. Häufig werden auch metallorganische Komplexe wie Alq3 als kleine Moleküle in OLEDs eingesetzt (siehe hierzu Abschnitt 3.1.4). Schichten aus kleinen Molekülen werden üblicherweise durch thermisches Verdampfen hergestellt, was beliebige Schichtabfolgen erlaubt und insbesondere bei vielschichtigen organischen Halbleiterbauelementen von Vorteil ist [36]. Zudem können durch Co-Verdampfen zweier Materialen auch dotierte Schichten hergestellt werden [17, 19, 69, 70]. Mit geeigneten Lösungsmitteln lassen sich kleine Moleküle aber auch aus der Lösung verarbeiten. In Abbildung 2.3(b) ist beispielhaft für kleine Moleküle die Strukturformel von Pentacen dargestellt.

2.1.2 Ladungstransport in organischen Halbleitern

Wie bereits erwähnt, verleihen die konjugierten π -Elektronensysteme organischen Halbleitern eine relativ hohe Leitfähigkeit. Die Beweglichkeit der Ladungsträger hängt jedoch stark vom Ordnungsgrad der hergestellten Schichten ab [57, 58]. In kristallinen Materialien werden Beweglichkeiten von 1-10 cm²/Vs erreicht [71]. Die in dieser Arbeit hergestellten Schichten kleiner Moleküle und konjugierter Polymere lagen jedoch als amorphe Materialien vor und weisen wesentlich geringere Beweglichkeiten auf. Obwohl innerhalb eines Moleküls Ladungsträgerbeweglichkeiten von bis zu 600 cm²/Vs gemessen wurden [64] ist die Beweglichkeit der Ladungsträger im amorphen Material wesentlich geringer und liegt in der Größenordnung von 10^{-8} cm²/Vs bis 10^{-3} cm²/Vs [56–58]. Dies liegt daran, dass die Ladungsträger Molekülgrenzen bzw. Konjugationsgrenzen durch thermisch aktivierte Tunnelprozesse überwinden müssen. Man spricht deshalb auch von Hopping-Transport [72].

Der Ladungsträgertransport in organischen Halbleitern lässt sich durch das Unordnungsmodell von H. Bässler beschreiben [72–74]. Dabei wird eine Gauß-Verteilung lokalisierter Zustände um die HOMO- und LUMO-Niveaus angenommen. Transport findet durch Hopping-Prozesse zwischen diesen Zuständen statt (siehe Abbildung 2.4). Insbesondere sind die Ergebnisse dieses Modells in guter Übereinstimmung mit experimentellen Befunden in Bezug auf die Temperatur- und Feldabhängigkeit der Ladungsträgerbeweglichkeit. Da die Hopping-Prozesse thermisch aktiviert sind, nimmt die Beweglichkeit mit steigender Temperatur T zu [75]:

$$\mu(T) \propto \exp(-E_a/kT).$$

 E_a steht für die zu überwindende Aktivierungsenergie, k ist die Boltzmann-Konstante. Zudem erniedrigt ein angelegtes elektrisches Feld F die beim Hüpfen zu überwindende Energiebarriere



Abb. 2.4: Unordnungsmodell nach H. Bässler [72–74]: Hopping-Transport von Ladungsträgern zwischen diskreten, lokalisierten, gaußverteilten Zuständen in einem organischen Halbleiter.

in Feldrichtung, was nach der Poole-Frenkel-Theorie zu einer feldabhängigen Beweglichkeit führt [76]:

$$\mu(F) \propto \exp(\beta \sqrt{F}) \,.$$

Hierbei ist $\beta = (e^3/\pi\varepsilon)^{1/2}/(kT)$ eine temperaturabhängige Konstante [77], $\varepsilon = \varepsilon_0\varepsilon_r$ die Permitivität und *e* die Elementarladung.

2.1.3 Optische Eigenschaften organischer Halbleiter

Die optischen Eigenschaften organischer Halbleiter werden im Wesentlichen durch Übergänge zwischen dem bindenden π -Molekülorbital (HOMO) und dem antibindenden π^* -Molekülorbital (LUMO) bestimmt. In organischen Festkörpern gibt es wohldefinierte Spinzustände. Der Grundzustand des Moleküls, bei dem alle bindenden Orbitale bis zum HOMO mit zwei Elektronen unterschiedlichen Spins besetzt sind, ist ein Singulett-Zustand und wird mit S₀ bezeichnet. Im ersten angeregten Zustand ist nur ein Elektron im HOMO und ein weiteres im LUMO. Haben die beiden Elektronen unterschiedliche Spinzustände, so liegt der Singulett-Zustand S₁ mit Gesamtspin S = 0 vor. Haben sie den selben Spinzustand, ergibt sich der Gesamtspin zu S = 1und der Triplett-Zustand T_1 liegt vor. Bei diesem handelt es sich eigentlich um drei entartete Zustände. Das fehlende Elektron im HOMO wird auch als Loch bezeichnet. Bedingt durch das Pauli-Prinzip bzw. die Austausch-Wechselwirkung ist der Triplett-Zustand T_1 gegenüber dem S₁-Zustand energetisch abgesenkt. In Abbildung 2.5 sind die Energieniveaus der Singulettund der Triplett-Zustände eines organischen Moleküls dargestellt. Diese Elektron-Loch-Paare werden auch als Frenkel-Exzitonen bezeichnet und können als wasserstoff- oder positroniumähnliche Systeme verstanden werden. Ihre Bindungsenergie ist durch die Coulomb-Anziehung gegeben und liegt mit etwa 0,5 eV deutlich über der Bindungsenergie von Exzitonen in anorganischen Halbleitern [78]. Sie sind somit bei Raumtemperatur sehr stabil gegenüber phononischen Anregungen (25 meV) und stark auf einem Molekül lokalisiert.

Übergänge $T_1 \rightarrow S_0$ werden als Phosphoreszenz, Übergänge $S_1 \rightarrow S_0$ als Fluoreszenz bezeich-



Abb. 2.5: Energieniveaus der Singulett- und Triplett-Zustände eines organischen Moleküls sowie die optischen Übergänge im Molekül.

net. Optische Übergänge zwischen Singulett- und Triplett-Zuständen (Intersystem-Crossing und Phosphoreszenz) sind spin-verboten, weshalb der Zustand T_1 Lebensdauern im Bereich $\tau_T \sim ms$ aufweist. Die Wahrscheinlichkeit dieser Übergänge hängt von der Stärke der Spin-Bahn-Kopplung in den Molekülen ab. Fluoreszenzlebensdauern liegen im Bereich $\tau_S \sim ns$ [61].

Um die Absorptions- und Emissionsspektren organischer Halbleitermaterialien besser zu verstehen, werden die optischen Übergänge zwischen den Singulett-Zuständen S_0 und S_1 im Folgenden genauer betrachtet. Bei diesen Übergängen dürfen die vibronischen Anregungen des Moleküls nicht vernachlässigt werden. Dies sind Vibrationen der Molekülrümpfe inklusive der σ -Bindungen. Sie können vereinfacht als Moden eines harmonischen Oszillators beschrieben werden. In Abbildung 2.6(a) sind die potentiellen Energien in einem Molekül für die beiden elektronischen Zustände S₀ und S₁ als Funktion der Kernabstandskoordinate dargestellt, inklusive der vibronischen Energieniveaus v. Optische Übergänge durch Absorption eines Photons ereignen sich auf Zeitskalen von 10^{-15} s, die Kernabstände relaxieren jedoch auf Zeitskalen von 10^{-12} s. Deshalb kann in einer guten Näherung davon ausgegangen werden, dass sich die Position der Atomkerne bei optischen Übergängen nicht ändert und optische Übergänge wie in Abbildung 2.6(a) vertikal stattfinden. Dies ist als Frank-Condon-Prinzip bekannt [60, 79]. Bei Raumtemperatur ist typischerweise der vibronische Grundzustand besetzt, da der Abstand zweier vibronischer Niveaus bei ca. 125 meV liegt [61]. Die Absorption eines Photons durch ein nicht angeregtes Moleküls erfolgt somit aus dem Zustand S_0 , v = 0 in einen der Zustände $S_1, v = 0, 1, 2, ...$, wodurch sich das typische Absorptionsspektrum organischer Materialien ergibt. Die vibronischen Anregungen relaxieren typischerweise auf einer Zeitskala von 10^{-12} s in den Zustand S_1 , v = 0, der eine Lebensdauer von ca. 10^{-9} s hat. Von dort kann das Molekül unter Aussendung von Photonen in den Grundzustand S₀ mit seinen verschiedenen vibronischen Anregungen v = 0, 1, 2, ... zurückkehren. Dadurch ergibt sich ein um den so genannten Stokes-



Abb. 2.6: a) Absorptions- und Emissionsprozesse eines Moleküls zwischen dem Grundzustand S_0 und dem ersten angeregten Singulett-Zustand S_1 unter Berücksichtigung der vibronischen Anregungen. b) Schematische Darstellung sich daraus ergebender typischer Absorptions- und Emissionsspektren.

Shift rotverschobenes Lumineszenzspektrum, das spiegelbildlich zum Absorptionsspektrum ist (siehe Abbildung 2.6(b)).

Neben der hier diskutierten Verbreiterung der Spektren durch die vibronischen Seitenbanden führt auch die jeweils leicht unterschiedliche Umgebung eines jeden Moleküls in den amorphen organischen Festkörpern zu einer inhomogenen Verbreiterung der Spektren [80].

2.2 Organische Leuchtdioden

2.2.1 Aufbau und Funktionsweise

Grundlegende Funktionsweise

Im vorangegangenen Abschnitt wurden die optischen Eigenschaften organischer Halbleitermaterialien diskutiert. Ein angeregtes organisches Halbleitermolekül im exzitonischen Zustand S_1 kann durch eine Elektron-Loch-Paar-Rekombination in seinen Grundzustand S_0 übergehen und dabei ein Photon mit der Energie $\hbar \omega = E(S_1) - E(S_0)$ aussenden. In elektrolumineszenten Bauteilen werden deshalb Elektronen und Löcher injiziert, die aufgrund ihrer Coulombwechselwirkung Exzitonen bilden und strahlend zerfallen sollen. In Abbildung 2.7(a) ist der schematische Aufbau einer einfachen OLED-Struktur dargestellt. Zwischen der transparenten Anode und der Metall-Kathode befindet sich eine organische Halbleiterschicht. Da diese Schichten aufgrund ihrer begrenzten Leitfähigkeit typischerweise dünner als 500 nm ausgelegt werden, wird ein stabiles Substrat benötigt. Hier kommt heutzutage üblicherweise Glas zum Einsatz. Über Anode und Kathode werden Löcher und Elektronen in das Bauteil injiziert. Ge-



Abb. 2.7: a) Schematischer Aufbau einer einfach OLED. b) Hopping-Transport von Molekül zu Molekül in der Emissionsschicht, Bildung eines Frenkel-Exzitons und Emission eines Photons.

trieben durch das angelegte elektrische Feld bewegen sich diese im organischen Material durch Hopping-Transport von Molekül zu Molekül in Richtung der jeweils gegensätzlichen Elektrode [56, 81] (siehe Abbildung 2.7(b)). Unterschreitet der Abstand zwischen einem Elektron und einem Loch den Coulomb-Radius [82]

$$r_C = \frac{e^2}{4\pi\varepsilon_0\varepsilon_r kT}\,,$$

so überwiegt die Coulomb-Anziehung von Elektron und Loch die thermische Energie und über die Langevin-Rekombination [83] bilden sie ein Frenkel-Exziton. Das Verhältnis von S_1 - zu T_1 -Exzitonen ist dabei aufgrund der Multiplizität der Singulett- und Triplett-Zustände 1:3 [12]. Dies limitiert die Effizienz der Bauteile, da der optische Übergang $T_1 \rightarrow S_0$ spin-verboten ist. Abhilfe schaffen hier Triplett-Emitter, auf die in Abschnitt 2.2.2 nochmals eingegangen wird.

Injektion von Ladungsträgern

Zur effektiven Injektion von Ladungsträgern sind spezielle Elektrodenmaterialien nötig, deren Austrittsarbeit im Falle der Anode in der Nähe des HOMO und im Falle der Kathode nahe am LUMO des organischen Halbleitermaterials liegt. Zudem muss eine der beiden Elektroden transparent sein, um die Lichtemission des Bauteils zu gewährleisten. Anodenseitig kommt deshalb meist Indiumzinnoxid (englisch: indium tin oxide, ITO) zum Einsatz. Für die Kathode werden üblicherweise geeignete Metalle verwendet. Die Austrittsarbeiten verschiedener Metalle sind in Abbildung 2.8(a) am Beispiel einer ITO/MEH-PPV-OLED dargestellt [84]. Abbildung 2.8(b) zeigt, dass das Bauteil mit einer Calcium-Kathode das effizienteste der untersuchten Bauteile ist. Einfache Modelle zur Injektion von Ladungsträgen in organische Halbleitermaterialien beschreiben die Injektion als thermionischen Emissionsprozess analog zum Schottky-Modell für die Injektion von Ladungsträgern in anorganische Bauelemente [85] oder als Tunnelprozess durch eine Energiebarriere [86, 87]. Um quantitative Übereinstimmungen mit



Abb. 2.8: a) Energieniveau-Diagramm einer OLED bei angelegter Spannung in Vorwärtsrichtung. Abhängig vom gewählten Kathodenmaterial müssen die Elektronen unterschiedlich hohe Injektionsbarrieren überwinden. b) Bauteileffizienz in Abhängigkeit der Kathodenmaterialien (aus Referenz [84]).

experimentellen Befunden zu erlangen, muss jedoch der geringen Leitfähigkeit der organischen Halbleiter Rechnung getragen werden und die Injektion als Hopping-Prozess in lokalisierte Zustände beschrieben werden [88, 89].

Effiziente Mehrschichtbauteile

Um die Ladungsträgerinjektion nicht durch auflaufende Raumladungen zu begrenzen, werden in effizienten OLEDs üblicherweise Lochtransportschichten (hole transport layer, HTL) und Elektronentransportschichten (electron transport layer, ETL) an den Elektroden verwendet. Diese gewährleisten einen effizienten Transport von Ladungsträgern aus den Injektionszonen ins Bauteilinnere. Hierzu eigenen sich besonders dotierte Schichten [17], durch die nahezu ohmsche Kontakte zu den Elektroden hergestellt werden und die eine hohe Leitfähigkeit aufweisen. Eine schematische Darstellung einer OLED mit mehreren Schichten ist in Abbildung 2.9 gezeigt. Neben HTL und ETL sind auch eine Elektronenblockschicht (electron blocking layer, EBL) und eine Lochblockschicht (hole blocking layer, HBL) zu sehen. Diese sorgen dafür, dass Elektronen und Löcher sich in der Emissionsschicht (emission layer, EML) akkumulieren, um Exzitonen zu bilden und nicht ungenutzt zur jeweiligen Gegenelektrode wandern.

2.2.2 Generelle Effizienzbetrachtungen

Die Quanteneffizienz einer OLED gibt an, wie effizient die injizierten Ladungsträger in Photonen umgesetzt werden. Man unterscheidet dabei zwischen der externen Quanteneffizienz η_{ext} und der internen Quanteneffizienz η_{int} , die über die Auskoppeleffzienz der Photonen η_{aus} miteinander verknüpft sind [44, 45]:

 $\eta_{\rm ext} = \eta_{\rm aus} \cdot \eta_{\rm int}$.



Abb. 2.9: Komplexe Mehrschicht-OLED mit Transportschichten (HTL, ETL), Blockschichten (HBL, EBL) und Emissionsschicht (EML). Dargestellt sind die Ladungsträgerinjektion (1), der Transport durch Hopping-Prozesse in den organischen Schichten (2), die Bildung eines gebundenen exzitonischen Zustandes (3) sowie dessen Zerfall unter Aussendung eines Photons (4).

Die Auskoppeleffizienz η_{aus} gibt an, welcher Anteil der im Bauteil erzeugten Photonen das Bauteil als nutzbares Licht verlassen kann. Da die Erhöhung der Auskoppeleffizienz das Ziel dieser Arbeit ist, wird im nächsten Abschnitt nochmals besonders darauf eingegangen.

Die interne Quanteneffizienz wird durch das Ladungsträgergleichgewicht γ (dies ist das Verhältnis von Elektronen zu Löchern oder umgekehrt, so dass stets $\gamma \leq 1$ gilt), den Anteil der strahlend zerfallenden Exzitonen η_{exz} und die Lumineszenzeffizienz ϕ_{rad} bestimmt [44, 45]:

$$\eta_{\rm int} = \gamma \cdot \eta_{\rm exz} \cdot \phi_{\rm rad}$$
.

Das Ladungsträgergleichgewicht sollte für ein effizientes Bauteil nahezu $\gamma \approx 1$ sein. Da die Beweglichkeiten von Löchern in organischen Halbleitermaterialien typischerweise um den Faktor 10-100 über den Mobilitäten der Elektronen liegen, muss durch entsprechend angepasste Transport- und Blockschichten ein Ladungsträgergleichgewicht hergestellt werden [90].

Der Anteil der Exzitonen, der strahlend zerfallen kann, ist in fluoreszenten Emittermaterialien auf $\eta_{exz} = 1/4$ begrenzt [12]. Durch Einsatz von phosphoreszenten Triplettemittern, die durch eine starke Spin-Bahn-Kopplung Triplett-Singulett-Übergänge erlauben, ist es jedoch möglich $\eta_{exz} \rightarrow 1$ zu erreichen [13–16].

Die Lumineszenzeffizienz ϕ_{rad} ist die intrinsische Quanteneffizienz für den strahlenden Zerfall und gibt an, welcher Anteil der Exzitonen, die strahlend zerfallen können, tatsächlich strahlend zerfällt. Um nichtstrahlende Fluoreszenzlöschung (quenching) zu vermeiden, sollte die Emissionszone möglichst von den Elektroden ferngehalten bzw. Verunreinigungen vermieden werden [91].



Abb. 2.10: (a) Schematische Darstellung der Raumwinkelelemente beim Übergang von Licht aus einem hochbrechenden Medium zu Luft. (b) Die sich daraus ergebende berechnete Abstrahlcharakteristik (durchgezogene Linie) im Vergleich zur lambertschen Abstrahlcharakteristik (gestrichelte Linie) und Messpunkten (aus Referenz [43]).

2.3 Optische Eigenschaften und Auskoppeleffizienz von OLEDs

2.3.1 Betrachtung im Rahmen der geometrischen Optik

Wichtige optische Eigenschaften von herkömmlichen OLEDs lassen sich bereits im Rahmen der geometrischen Optik verstehen und herleiten, obwohl für die korrekte Beschreibung der Optik von OLEDs aufgrund der geringen Schichtdicken ein wellenoptisches Bild herangezogen werden muss. Um die winkelabhängige Abstrahlung von OLEDs zu verstehen, genügt ein stark vereinfachten Modell einer OLED, in dem ein isotrop abstrahlender Emitter (mit einheitenloser Strahlungsintensität $I_e(\theta_e) = 1$) sich in einem Hochindexmaterial (Emittermaterial) mit Brechungsindex n_e befindet [43]. Hierbei bezeichnet θ_e den Abstrahlwinkel zur Schichtnormalen im Emittermaterial. Beim Übergang des ausgesandten Lichts vom hochbrechenden Emittermaterial zu Luft, werden die Lichtstrahlen gemäß dem snelliusschen Brechungsgesetz $\sin \theta = n_e \cdot \sin \theta_e$ zu größeren Winkeln θ hin gebrochen. Ab dem kritischen Winkel $\theta_e = \theta_c =$ $\arcsin(1/n_e)$ werden die Strahlen an der Grenzfläche zur Luft totalreflektiert. Ausgehend von einer Betrachtung von $d\theta_e/d\theta$ ergibt sich die Veränderung entsprechender Raumwinkelelemente beim Übergang vom Emittermaterial zur Luft zu: $d\Omega_e/d\Omega = \cos\theta/n\sqrt{n^2 - \sin^2\theta}$ (siehe Abbildung 2.10(a)). Für typische Brechungsindizes des Emitters im Bereich 1,6-2,1 ist diese Funktion der Funktion $\cos \theta / n^2$ sehr ähnlich und kann durch diese genähert werden (siehe Abbildung 2.10(b)). Da $I_e(\theta_e) = 1$ gilt, ergibt sich ein lambertsches Abstrahlprofil für die OLED

$$I(\theta) \propto \cos \theta$$
.

Der Anteil des Lichts, der das Bauteil verlassen kann, lässt sich bestimmen, indem man den Raumwinkel bis zum kritischen Winkel θ_c bestimmt $\Omega_e(\theta_c) = \int_0^{2\pi} d\varphi \int_0^{\theta_c} \sin \theta_e d\theta_e = 2\pi (1 - \cos \theta_c)$ und ins Verhältnis zum gesamten Raumwinkel 4π setzt. Berücksichtigt man durch einen



Abb. 2.11: Schematische Darstellung optischer Verlustkanäle in OLEDs. Nur ca. 20% des durch Exzitonenzerfall generierten Lichtes verlässt das Bauteil als nutzbares Licht.

Faktor 2, dass durch die Reflexion an der Kathode doppelt so viel Licht das Bauteil verlassen kann, so ergibt sich für die Auskoppeleffizienz:

$$\eta_{\mathrm{aus}} = 1 - \cos heta_c pprox rac{1}{2n^2}$$
 .

Für ein Emittermaterial mit Brechungsindex n = 1,7 verlassen somit weniger als 20% des generierten Lichts das Bauteil als nutzbares Licht. Den Raumwinkelbereich mit $\theta_e < \theta_c$ nennt man auch Lichtkegel. Fresnel-Verluste innerhalb des Lichtkegels reduzieren die Auskoppeleffizienz nochmals, wurden hier jedoch nicht berücksichtigt

2.3.2 Optische Verlustkanäle

Das Licht, das die OLED nicht verlassen kann, kann in verschiedene Verlustkanäle unterteilt werden. In Abbildung 2.11 sind diese dargestellt und gewichtet. Ausschlaggebend hierfür sind die Brechungsindizes der verschiedenen Schichten. Die Lichtemission findet in OLEDs innerhalb eines Schichtstapels mit Brechungsindizes im Bereich 1,6-2,1 statt. Dieser ist typischerweise auf einem Glassubstrat mit einem Brechungsindex um 1,5 aufgebracht. Somit bilden die organischen Halbleiterschichten zusammen mit der ITO-Schicht einen Schichtwellenleiter, in dem ca. 40-50% des generierten Lichts als sogenannte Wellenleitermoden (geführte Moden) oder Oberflächenplasmonpolaritonen (surface plasmon polaritons, SPPs) verbleiben [44, 45]. Auf beide Begriffe wird weiter unten nochmals detailliert eingegangen. 30-40% des erzeugten Lichts kann zwar ins Glassubstrat gelangen, wird dann aber an der Glas-Luft-Grenzfläche totalreflektiert. Ohne den Einsatz von Auskoppelstrukturen kann somit nur das Licht innerhalb des Lichtkegels das Bauteil als nutzbares Licht verlassen, was die Auskoppeleffizienz auf ca. 20% limitiert.

Moden: Lösungen der Helmholtz-Gleichung

Um Methoden zur Erhöhung der Auskoppeleffizienz zu entwickeln, ist es wichtig, eine detailliertere Klassifikation der optischen Verlustkanäle vorzunehmen. Da die Dicke der organischen Schichten in der Größenordnung der Lichtwellenlänge liegt, ist eine Beschreibung im Rahmen der geometrischen Optik nicht möglich. Zur Klassifikation der Verlustkanäle müssen die möglichen Lösungen der Maxwellgleichungen (Moden) für das elektromagnetische Feld im Bauteil bestimmt werden.

Aus den Maxwell- und Materialgleichungen lässt sich eine Wellengleichung für das elektrische Feld herleiten, die mit dem Ansatz einer harmonischen Zeitabhängigkeit schließlich auf die Helmholtzgleichung für die stationären Lösungen des elektrischen Feldes führt [92, 93]:

$$\left(\Delta + n^2 \frac{\omega^2}{c_0^2}\right) \vec{E}\left(\vec{r}\right) = 0, \qquad (2.1)$$

mit der Vakuumlichtgeschwindigkeit c_0 und dem Brechungsindex

$$n = \sqrt{\mu_r(\vec{r})\,\varepsilon_r(\vec{r}) - i\frac{\mu_r(\vec{r})\,\kappa(\vec{r})}{\omega\varepsilon_0}}\,,\tag{2.2}$$

der sich aus der Permeabilität μ_r , der Permitivität $\varepsilon = \varepsilon_0 \varepsilon_r$ und der Leitfähigkeit κ eines Materials ergibt. Dabei wurde ein isotropes, lineares, zeitunabhängiges Material ohne Raumladungen zugrunde gelegt. Ein Lösungsansatz der Form

$$\vec{E}\left(\vec{r}\right) = \vec{E} \cdot e^{\pm ik\vec{r}} \tag{2.3}$$

für den stationären Teil des elektrischen Feldes führt schließlich zur Dispersionsrelation

$$\omega^2 = \frac{c_0^2}{n^2} \vec{k}^2, \qquad (2.4)$$

die der Wellenvektor \vec{k} erfüllen muss. Die elementaren Lösungen der Helmholtzgleichung 2.1 sind somit vorwärts (f, -) und rückwärts (b, +) laufende ebene Wellen der Form:

$$\vec{E}_{f/b}^{TE/TM}(\vec{r},t) = E_{f/b}^{TE/TM} \cdot e^{i\left(\omega t \mp \vec{k}\vec{r}\right)} \cdot \vec{e}_{\perp \vec{k}}^{TE/TM}, \qquad (2.5)$$

die senkrecht zur Ausbreitungsrichtung \vec{k} polarisiert sind. Hierbei unterscheidet man transversal elektrische (TE) und transversal magnetische (TM) Moden. Im TE-Fall steht das elektrische, im TM-Fall das magnetische Feld senkrecht auf der Einfallsebene, die durch die Wellenvektoren \vec{k} der vorwärts- und rückwärtslaufenden Wellen aufgespannt wird.

Die Parameter in den Gleichungen 2.1 und 2.2 sind materialspezifisch und somit ergeben

sich in jeder Schicht elementare Lösungen der Form 2.5. Über die Stetigkeitsbedingungen des elektrischen Feldes an Materialgrenzflächen [94] müssen die Lösungen in den verschiedenen Schichten aneinander angepasst werden. Ist dies möglich, so bezeichnet man die gefundene Lösung als Mode des Wellenleiters für eine bestimmte Wellenlänge. Ist die Anpassung über die Stetigkeitsbedingungen nicht möglich, dann existiert bei dieser Wellenlänge in dem System keine Lösung mit dem speziellen Wellenvektor \vec{k} . Da die Länge des Vektors \vec{k} schichtabhängig ist, nimmt man zur Klassifikation der Moden die Wellenvektorkomponente $\beta = k_{\parallel}$, die parallel zur Schichtgrenze liegt und deren Wert unabhängig von der jeweiligen Schicht ist. β wird auch Propagationskonstante genannt und kann komplexe Werte annehmen.

Klassifikation der Moden

In diesem Abschnitt wird zunächst von einem realen β ausgegangen. Für ein komplexes β gelten alle folgenden Überlegungen analog für den Realteil. Die Bedeutung des Imaginärteils von β wird weiter unten erläutert.

Verdeutlicht man sich, dass der Winkel θ zur Oberflächennormalen durch sin $\theta = \beta/|\vec{k}|$ gegeben ist, so wird klar, dass β für eine gegebene Frequenz ω als eine Art verallgemeinerter Winkel aufgefasst werden kann. Insbesondere ist die Klassifikation mittels β hilfreich im Hinblick auf die Frage, ob eine Mode oberhalb oder unterhalb des kritischen Winkels der Totalreflektion liegt und das Bauteil verlassen bzw. die Grenzfläche zwischen zwei Schichten überwinden kann. Dies ist in Abbildung 2.12 exemplarisch für Licht veranschaulicht, das aus einem optisch dichteren Material mit Brechungsindex n > 1 auf die Grenzfläche zu Luft trifft. Für Winkel $\theta < \theta_c$, dies entspricht $\beta < k_0$, kann das Licht das hochbrechende Material verlassen. Hierbei ist $k_0 = |\vec{k}_{Luft}|$.



Abb. 2.12: Verhalten von Licht beim Übergang vom optisch dichteren zum optisch dünneren Medium: Für Winkel $\theta < \theta_c$, dies entspricht $\beta < k_0$, kann das Licht das hochbrechende Material verlassen. Hierbei ist $k_0 = |\vec{k}_{Luft}|$. Der Fall $\beta = k_0$ entspricht gerade dem Grenzwinkel der Totalreflektion θ_c . Für $\beta > k_0$ kann sich die Mode bzw. das Licht nicht außerhalb der hochbrechenden Schicht ausbreiten und wird totalreflektiert.



Abb. 2.13: Klassifikation von Moden in OLEDs im Dispersionsdiagramm $\omega(\beta)$. Die Moden werden anhand der Lichtlinien klassifiziert. Rechts von der Substrat-Lichtlinie $\omega = (c_0/n_{\text{Substrat}}) \cdot \beta$ sind die geführten Wellenleitermoden zu sehen (gekennzeichnet durch diskrete Werte der Propagationskonstante $k_x = \beta_{1/2}$). Zudem ist auch ein Oberflächenplasmonpolariton (SPP) dargestellt, auf das weiter unten näher eingegangen wird. Links von der Substrat-Lichtlinie, aber rechts von der Lichtlinie (light line) $\omega = c_0 \cdot \beta$, befinden sich die Substratmoden, die zwar in das Substrat gelangen, aber an der Grenzfläche zu Luft totalreflektiert werden. Moden links von der Lichtlinie $\omega = c_0 \cdot \beta$ befinden sich innerhalb des Lichtkegels und können das Bauteil direkt verlassen. (Mit k_x ist in der obigen Darstellung der Realteil des Wellenvektors in x-Richtung gemeint.)

Der Fall $\beta = k_0$ entspricht gerade dem Grenzwinkel der Totalreflektion θ_c . Für $\beta > k_0$ kann sich die Mode bzw. das Licht nicht außerhalb der hochbrechenden Schicht ausbreiten und wird totalreflektiert.

Für eine typische OLED ist diese Modenklassifikation im Dispersionsdiagramm $\omega(\beta)$ in Abbildung 2.13 dargestellt. Moden links von der Lichtlinie (light line) $\omega = c_0 \cdot \beta$ befinden sich innerhalb des Lichtkegels und können das Bauteil direkt verlassen. Rechts von dieser Linie, aber links von der Substrat-Lichtlinie $\omega = (c_0/n_{\text{Substrat}}) \cdot \beta$, finden wir die Substratmoden, die zwar in das Substrat gelangen, aber an der Grenzfläche zu Luft totalreflektiert werden. Rechts von der Substrat-Lichtlinie sind die Wellenleitermoden zu sehen. Dies sind gebundene Moden, die den OLED-Dünnschichtstapel nicht verlassen können. Aufgrund der geringen Dicke der OLEDs von einigen hundert Nanometern gibt es nur für diskrete Werte von β Wellenleitermoden, wohingegen die Substratmoden aufgrund der makroskopischen Substratdicke von etwa einem Millimeter kontinuierlich verteilt sind. Dies gilt auch für die Moden innerhalb des Lichtkegels. Zudem ist in Abbildung 2.13 auch die Dispersionsrelation eines Oberflächenplasmonpolaritons dargestellt, auf das weiter unten näher eingegangen wird.



Abb. 2.14: Schematische Darstellung des Intensitätsverlaufes $|\vec{E}(z)|^2$ über verschiedene OLED-Schichten hinweg. Die geführten Moden haben typischerweise eine hohe Intensität in den hochbrechenden Materialien (ITO, Organik) und fallen im niedrigbrechenden Glassubstrat und im Metall exponentiell ab. Sie breiten sich parallel zu den Schichtgrenzen aus.

Geführte Wellenleitermoden

Das Licht im Lichtkegel und die Substratmoden können im Rahmen der geometrischen Optik behandelt werden. Um sich ein Bild der geführten Wellenleitermoden zu machen, betrachtet man typischerweise deren Intensitätsprofil senkrecht zu ihrer Ausbreitungsrichtung im Schichtwellenleiter. Dies ist in Abbildung 2.14 exemplarisch gezeigt. Die Wellenleitermoden haben typischerweise eine hohe Intensität in den hochbrechenden Materialien (ITO, Organik) und fallen im niedrigbrechenden Glassubstrat und im Metall exponentiell ab. Neben der Propagationskonstante β einer Mode ist auch deren effektiver Brechungsindex

$$n_{\rm eff} = \frac{\beta}{k_0} \tag{2.6}$$

geeignet, um diese zu klassifizieren [95, 96]. Es sei hier ausdrücklich darauf hingewiesen, dass dies kein Materialparameter ist und auch kein "mittlerer Brechungsindex", der von der Mode wahrgenommen wird, sondern eine Modenkennzahl¹. Für geführte Moden in einem Schichtwellenleiter aus hoch- (n_h) und niedrigbrechenden (n_l) Materialien gilt jedoch $n_l < n_{eff} < n_h$.

Imaginärteil der Propagationskonstante - Modenabsorption

Die Propagationskonstante β und der effektive Brechungsindex n_{eff} beschreiben die Ausbreitung der Wellenleitermoden in einem Schichtwellenleiters. Aus Gleichung 2.5 folgt, dass mit

¹Zur Verdeutlichung stelle man sich zwei verschiedene Moden in einem dicken Schichtwellenleiter vor (Dicke $d \gg \lambda_0$). Für beide Moden sind die Modenintensitäten und die Füllfaktoren außerhalb der Hochindexschicht verschwindend gering. Ihr mittlerer Brechungsindex wäre demnach gleich dem Brechungsindex der Hochindexschicht. Sie können nach Gleichung 2.6 jedoch sehr verschiedene effektive Brechungsindizes haben [95].



Abb. 2.15: (a) Darstellung des Feldverlaufes E_z von SPPs im Dielektrikum und im Metall. SPPs sind elliptisch polarisiert, wobei die Polarisationsellipse im Dielektrikum senkrecht auf der Metall-Dielektrikum-Grenzfläche steht. Deshalb können SPPs nur durch Emitter mit einem Dipolmoment, welches senkrecht zur Grenzfläche steht, effizient angeregt werden [99, 100]. (b) Schematische Darstellung eines SPP als Kombination aus Polariton im Dielektrikum und einer plasmonischen Anregung im Metall.

einem nicht-verschwindenden Imaginärteil von β und n_{eff} das exponentielle Abklingen einer Mode bei ihrer Ausbreitung parallel zu den Schichtgrenzen im Wellenleiter verbunden ist. Der damit verbundene Moden-Absorptionskoeffizient ist [97]:

$$\alpha = \frac{4\pi}{\lambda} Im\{n_{\text{eff}}\} = 2Im\{\beta\}.$$
(2.7)

Oberflächenplasmonpolaritonen

Oberflächenplasmonpolaritonen (surface plasmon polaritons, SPPs) sind spezielle Moden, die sich an Schichtgrenzen zwischen einem Metall und einem Dielektrikum oder Vakuum ausbilden können und deren Feld in beiden Materialien exponentiell abfällt [98]. In Abbildung 2.15(a) ist dies verdeutlicht. Die Eindringtiefe in das Metall beträgt je nach Material einige 10nm, im Dielektrikum liegt sie in der Größenordnung der Wellenlänge der Anregung: $\lambda_{SPP} \sim \lambda_0$. Es handelt sich bei SPP-Moden um eine Kombination von Elektronendichteschwingungen (Plasmonen) an der Metalloberfläche und Polaritonen im Dielektrikum, die sich entlang der Schichtgrenze ausbreiten (siehe Abbildung 2.15(b)). Ist kein Dielektrikum vorhanden, spricht man auch von Oberflächenplasmonen (SPs, surface plasmons), da im Vakuum statt Polaritonen Photonen angeregt werden. Ein wichtiges Merkmal von SPPs ist ihre Polarisation. Sie sind elliptisch polarisiert, wobei die Polarisationsellipse im Dielektrikum senkrecht auf der Metall-Dielektrikum-Grenzfläche steht und im Metall parallel zu dieser liegt [93], was in Abbildung 2.15(a) dargestellt ist. Deshalb können SPPs nur durch Emitter mit einem Dipolmoment, welches senkrecht zur Grenzfläche steht, effizient angeregt werden [99, 100]. Die Propagationskonstante von SPPs ist gegeben durch [98]:

$$\beta_{\mathrm{SPP}} = k_0 \sqrt{\frac{\varepsilon_{\mathrm{d}} \varepsilon_{\mathrm{m}}}{\varepsilon_{\mathrm{d}} + \varepsilon_{\mathrm{m}}}},$$

wobei hier alle Größen als Realteile zu verstehen sind. ε_d ist der Realteil der Dielektrizitätskonstante des Dielektrikums, ε_m der Realteil der Dielektrizitätskonstante des Metalls und $k_0 = \omega/c_0$. Nur für Metalle mit realem $\varepsilon_m < 0$ können sich SPPs ausbilden und es ergibt sich [101]:

$$\beta_{\rm SPP} > k_0 \sqrt{\varepsilon_{\rm d}} = k_0 n_{\rm d} \,, \tag{2.8}$$

wobei n_d der Brechungsindex des Dielektrikums ist. Die Propagationskonstante von SPPs ist somit größer als der Wellenvektor im Dielektrikum, was eine direkte Anregung von SPPs durch Photonen unmöglich macht. Anhand einer typischen SPP-Dispersionsrelation ist dies in Abbildung 2.13 schematisch dargestellt. SPPs werden üblicherweise direkt über eine Nahfeldwechselwirkung mit dem Emitter, durch evaneszente Kopplung oder durch Gitterkopplung angeregt. Da Gleichung 2.8 generell eine Kopplung von Photonen an SPPs verbietet, kann auch die Auskopplung von SPPs nur über evaneszente Kopplung, Streuung oder Gitterkopplung erfolgen (siehe hierzu auch Abschnitt 2.4).

2.3.3 Füllfaktoren

Die Absorptionsverluste von geführten Moden in Wellenleitern lassen sich näherungsweise über die Füllfaktoren der Moden in den verschiedenen Wellenleiterschichten beschreiben [97, 102, 103]. Sind die Imaginärteile der Brechungsindizes der Materialien im Wellenleiter wesentlich kleiner als die entsprechenden Realteile, so lässt sich die Feldverteilung der Moden im Wellenleiter in guter Näherung unter Vernachlässigung der Imaginärteile der Materialien berechnen. Über die Füllfaktoren Γ_i der Mode in den einzelnen Schichten *i* lässt sich die Modenabsorption dann näherungsweise aus den Absorptionskonstanten der einzelnen Schichtmaterialien $\alpha_i = (4\pi/\lambda) \cdot Im\{n_i\}$ berechnen:

$$\alpha \approx \sum_i \frac{n_i}{n_{\rm eff}} \Gamma_i \alpha_i \,.$$

Der Füllfaktor Γ_i ist ein Maß für die relative Intensität der Mode in einer Schichten *i* des Wellenleiters:

$$\Gamma_i = \frac{\int_{\text{Schicht } i} |\vec{E}|^2 dz}{\int_{-\infty}^{\infty} |\vec{E}|^2 dz}.$$

Eine detaillierte Herleitung dieser Formel, insbesondere für die TM-Polarisation, ist in Referenz [103] zu finden.

2.3.4 Microcavity-Effekte und Besetzung der Moden in OLEDs

Im vorangegangenen Abschnitt wurden die optischen Eigenschaften und speziell das breite Lumineszenzspektrum organischer Leuchtdioden diskutiert. In OLEDs liegen organische Halbleitermaterialien jedoch als amorphe Festkörperschicht und nicht als Einzelemitter vor. Die Emitterschicht ist eingebettet in einen dielektrischen Dünnschichtstapel mit einer Gesamtdicke in der Größenordnung der Wellenlänge des emittierten Lichts. Zusätzlich wirkt die Metallkathode als metallischer Spiegel. Diese Umgebung (Microcavity) beeinflusst die spontane Emission der angeregten exzitonischen Zustände im Emittermaterial und wirkt sich so auf das Spektrum, die Winkelverteilung und über die Lumineszenzeffizienz ϕ_{rad} (die intrinsische Quanteneffizienz für den strahlenden Zerfall) auch auf die Gesamteffizienz der Bauteile aus [104–111].

Im Rahmen der klassischen Elektrodynamik kann der Einfluss der Microcavity am Modell eines emittierenden Dipols behandelt werden, dessen Feld durch die Microcavity auf ihn selbst zurückwirkt [112–114]. Quantenmechanisch kann die Abhängigkeit der spontanen Emission von der Umgebung als stimulierte Emission durch Vakuumfluktuationen verstanden werden [115]. Die spontane Emission eines angeregten Exzitons in eine bestimmte photonische Mode lässt sich demnach durch Fermis Goldene Regel beschreiben [116]. Die Übergangsrate zwischen dem angeregten exzitonischen Zustand $|m\rangle$ und dem Endzustand $|n\rangle$ unter Emission eines Photons mit Energie $E = \hbar \omega$ in eine Mode mit Wellenvektor \vec{k} ist demnach [45, 115, 117]

$$d\Gamma_{mn} \propto |\langle m|\vec{d} \cdot \vec{E}(\vec{k},z)|n\rangle|^2 \cdot \delta(E_m - E_n - \hbar\omega).$$
(2.9)

Hierbei sind E_m und E_n die Energien der exzitonischen Zustände $|m\rangle$ und $|n\rangle$, $\vec{E}(\vec{k},z)$ ist das elektrische Feld der Mode an der Position z des Exzitons im Bauteil (z-Richtung: senkrecht zu den Schichten) und \vec{d} ist das Dipolmoment des Exzitons. Die Emissionsrate wird demnach zum einen bestimmt durch die Polarisation der Mode bzw. die Richtung des elektrischen Feldvektors relativ zum exzitonischen Dipolmoment und zum anderen durch die Feldstärke der Mode an der Position des Exzitons. Je nach Lage der Emissionszone relativ zu der Intensitätsverteilung $I(z) \propto |\vec{E}(\vec{k},z)|^2$ einer bestimmten Mode ergibt sich dann eine bestimmte Kopplungseffizienz. Da die Intensitätsverteilung einer Mode von deren Frequenz ω und ihrem Wellenvektor \vec{k} abhängt, ergibt sich eine Abhängigkeit der Emission von Wellenlänge und Emissionswinkel. Dies gilt sowohl für die Emission in diskrete gebundene Moden als auch für die Emission in die kontinuierlich verteilten Substratmoden und den Lichtkegel. Die Gesamtrate W_R für die strahlende Emission ergibt sich durch Summation bzw. Integration über alle Moden. Dabei spielt die Zustandsdichte der Moden eine entscheidende Rolle. Die Rate der strahlenden Emission W_R lässt sich als Summe dreier Terme ausdrücken [45]:

$$W_{\rm R} = W_{\rm ext} + W_{\rm sub} + W_{\rm IO}$$

wobei W_{ext} für den Anteil der direkt emittierten Photonen, W_{sub} für die in die Substratmoden emittierten Photonen und W_{IO} für die in die geführten Moden emittierten Photonen steht. Der Index IO steht dabei für ITO und Organik. Die oben eingeführte Auskoppeleffizienz lässt sich damit als

$$\eta_{\rm aus} = \frac{W_{\rm ext}}{W_{\rm R}}$$

schreiben. Die Position der Emitter wirkt sich auch auf die Übergangsraten nichtstrahlender Prozesse wie der Nahfeldwechselwirkung mit den Kathodenmaterialien (W_{D-M}) oder die Anregung von SPPs (W_{SPP}) aus. Darüber hinaus gibt es auch einen Anteil der Zerfallsrate W_{NR} , der nicht von der Umgebung des Emitters abhängt. Für eine Betrachtung der Gesamteffizienz müssen alle diese Verlust- und Zerfallskanäle für die jeweilige Bauteilarchitektur mit in Betracht gezogen werden. Es gilt für die gesamte Rekombinationsrate [45]:

$$W_{\rm TOT} = W_{\rm R} + W_{\rm D-M} + W_{\rm SPP} + W_{\rm NR} \, .$$

Damit ist die Lumineszenzeffizienz gegeben durch

$$\phi_{\rm rad} = \frac{W_{\rm R}}{W_{\rm TOT}}$$

Mittels eines geeigneten Schichtdesigns können OLEDs damit in gewissen Grenzen im Hinblick auf die Gesamteffizienz, die spektralen Eigenschaften oder auch die Winkelabhängigkeit optimiert werden [108, 110].

2.4 Bragg-Streuung von geführten Moden in OLEDs

In Abschnitt 2.3.4 wurde beschrieben, wie sich der Aufbau der Microcavity einer OLED auf die spontanen Emissions- und Übergangsraten für die Zerfallskanäle der Exzitonen auswirkt. Zur Erhöhung der Auskoppeleffizienz ist es von Interesse, das in den Wellenleitermoden (inklusive der SPPs) und Substratmoden gefangene Licht als nutzbares Licht aus dem Bauteil auszukoppeln. Die Auskopplung der Substratmoden - insbesondere durch Strukturierung der Substrataußenseite - ist nicht primäres Ziel dieser Arbeit und weithin untersucht [41, 47, 118– 121]. Die Auskopplung von geführten Moden in der ITO-Schicht und den Organik-Schichten gestaltet sich wesentlich komplizierter. Die Schichten befinden sich zum einen im Inneren des Bauteils, zum anderen weisen die Schichten lediglich Dicken im Bereich von 10 nm bis hin zu einigen 100 nm auf.

Ein Ansatz zur Auskopplung des Lichts, das in diesen Schichten in Form von Wellenleitermoden und SPPs gefangen ist, stellt das Einbringen von Bragg-Gittern dar. Dies sind periodische Nanostrukturen mit einer Gitterkonstante in der Größenordnung der Wellenlänge des emittierten Lichts. An diesen Strukturen können die geführten Moden elastisch und kohärent gestreut und dadurch ausgekoppelt werden. Man spricht deshalb auch von Bragg-Streuung.

Da der Wellenvektor proportional zum Impuls $\vec{p} = \hbar \vec{k}$ der gestreuten Photonen ist, lässt sich die Wirkung der periodischen Bragg-Gitter anhand der Impuls- und Energieerhaltung erklären. In Abbildung 2.16(a) ist ein Schichtwellenleiter mit einem eindimensionalen Bragg-Gitter der Periode Λ_x in x-Richtung dargestellt. In x-Richtung ist der Raum somit periodisch moduliert. Dies führt dazu, dass der Impuls der Photonen nur noch bis auf ein Vielfaches von $\hbar \vec{G} = \hbar G_x \cdot \vec{e}_x$ erhalten ist, wobei \vec{G} der reziproke Gittervektor ist. Für die Wellenvektorkomponente in x-Richtung ergibt sich damit nach der Streuung:

$$k'_x = \beta \pm m \cdot G_x, \ m \in \mathbb{Z}.$$
(2.10)

Diese Gleichung wird oft als Bragg-Formel bezeichnet. Dabei wurde $k_x = \beta$ verwendet und es gilt $G_x = 2\pi/\Lambda_x$. In y-Richtung ist der Raum bzw. das Bauteil homogen, woraus die Erhaltung der y-Komponente des Wellenvektors folgt:

$$k'_v = k_v$$

In z-Richtung ist das Bauteil weder homogen noch periodisch moduliert, so dass diese Impulskomponente nicht erhalten ist. Sie ergibt sich bei der Bragg-Streuung durch die Energieerhaltung

$$|\vec{k}'| = |\vec{k}|,$$

wobei der Zusammenhang $E = \hbar \omega = \hbar c |\vec{k}|$ zwischen Photonenenergie und Wellenvektor benutzt wurde. Für eine geeignet gewählte Gitterkonstante Λ_x lässt sich durch Bragg-Streuung

$$k_x' < k_0$$

erreichen. Nach Abbildung 2.12 bedeutet dies die Auskopplung der Mode unter einem Auskopplunkel θ . Für diesen gilt nach Gleichung 2.10 mit Gleichung 2.6:

$$\sin \theta = n_{\rm eff} - m \cdot \frac{\lambda_0}{\Lambda_x} , \qquad (2.11)$$

wobei λ_0 die Vakuumwellenlänge ist. Hierbei wurde nur der Streuprozess mit negativem Vorzeichen betrachtet. Abbildung 2.16(b) verdeutlicht die Bragg-Streuung anhand der Dispersionsrelation. Durch Subtraktion von reziproken Gittervektoren werden Photonen aus gebundenen Moden, die unterhalb bzw. rechts von der Lichtlinie liegen, in Moden mit kleineren k_x -Werten gestreut, die innerhalb des Lichtkegels liegen und das Bauteil verlassen können. Dies gilt auch für SPPs.



Abb. 2.16: (a) Schematische Darstellung der Wirkung eines eindimensionalen Bragg-Gitters in einem Schichtwellenleiter. Durch Bragg-Streuung am Gitter wird die Propagationskonstante β einer geführten Mode um $G_x = 2\pi/\Lambda_x$ verringert. Die gestreute Mode mit $k'_x = \beta - G_x$ kann dadurch das Bauteil verlassen. (b) Bragg-Streuung gebundener Moden verdeutlicht anhand des Dispersionsdiagramms. (Mit k_x ist in der obigen Darstellung der Realteil des Wellenvektors in x-Richtung gemeint.)

Werden zweidimensionale Bragg-Gitter in den Wellenleiter eingebracht, so gilt für die y-Richtung ebenfalls

$$k'_{\mathcal{V}} = k_{\mathcal{V}} \pm n \cdot G_{\mathcal{V}}, \ n \in \mathbb{Z}.$$

$$(2.12)$$

mit $G_y = 2\pi/\Lambda_y$. Über die resultierende z-Komponente des Wellenvektors kann dann wiederum der Auskoppelwinkel bestimmt werden.
3 Materialien, Herstellungsprozesse und Messmethoden

In diesem Kapitel werden die Materialien, die Herstellungsprozesse und die Messmethoden beschrieben, welche im Rahmen dieser Arbeit verwendet wurden. Bezüglich der Materialien und Prozesse wird dabei insbesondere zwischen Polymer-OLEDs und OLEDs aus kleinen Molekülen unterschieden. Dieses Kapitel stellt eine Übersicht dar. Da sich die hergestellten Bauteile je nach Experiment in ihrem Aufbau etwas unterscheiden, ist die detaillierte Beschreibung der jeweils verwendeten OLEDs in den Ergebniskapiteln zu finden.

3.1 Verwendete Materialien

In diesem Abschnitt werden die beiden OLED-Typen vorgestellt, die für die experimentellen Untersuchungen in dieser Arbeit hergestellt wurden, und die dafür verwendeten Materialien beschrieben.

3.1.1 OLED-Typen

Im Rahmen dieser Arbeit werden sowohl Polymer-OLEDs als auch OLEDs aus kleinen Molekülen betrachtet. Der Aufbau der Bauelemente wurde jeweils an die speziellen Anforderungen der einzelnen Experimente angepasst. Es wurden beispielsweise die Schichtdicken verändert oder Gitterstrukturen in die Bauelemente eingebracht. Die konkrete Bauelementstruktur sowie die verwendeten Schichtdicken und Parameter werden daher in den jeweiligen Ergebniskapiteln ausführlich diskutiert.

In Abbildung 3.1 ist der grundsätzliche Aufbau der beiden OLED-Typen dargestellt. Bei beiden handelt es sich um klassische sogenannte Bottom-emission-Bauteile, bei denen die Lichtemission durch eine transparente ITO-Anode und das Glassubstrat stattfindet. Die Polymer-OLEDs und die OLEDs aus kleinen Molekülen wurden auf den gleichen mit ITO vorbeschichteten Glassubstraten hergestellt. Auch der Aufbau der Kathode ist beiden gemein. Die hergestellten Polymer-OLEDs weisen jedoch nur zwei organische Schichten auf, während die OLEDs aus kleinen Molekülen aus vier organischen Schichten bestehen. Durch die verwendeten Aufdampfprozesse war der Aufwand zur Herstellung von OLEDs aus kleinen Molekülen größer, allerdings weist der Prozess eine etwas höhere Reproduzierbarkeit auf.



Abb. 3.1: Grundsätzlicher Aufbau der beiden verwendeten OLED-Typen: (a) OLED aus kleinen Molekülen, (b) Polymer-OLED. Es handelt sich bei beiden um sogenannte Bottom-emission-Bauteile, bei denen die Lichtemission durch eine transparente ITO-Anode und das Glassubstrat stattfindet.

3.1.2 Substrat und Elektroden

3.1.2.1 Substrat

Als Substrat wurde ein kommerziell erhältliches Borofloatglas mit einer Dicke von 1 mm der Firma Merck KGaA verwendet, das mit 130 nm ITO vorbeschichtet ist. Die Substrate wurden auf eine Fläche von $25 \text{ mm} \times 25 \text{ mm}$ zugeschnitten, auf der jeweils vier OLEDs mit einer aktiven Fläche von je $5 \text{ mm} \times 5 \text{ mm}$ hergestellt wurden.

3.1.2.2 Anode: ITO

Als Anodenmaterial wurde ITO verwendet. Dies ist ein Mischoxid aus Indium(III)oxid (In₂O₃) und Zinn(IV)oxid (SnO₂). Die verwendete Schicht mit einer Dicke von 130 nm führt einerseits zu einem Flächenwiderstand von ca. 15 Ω/\Box , weist aber andererseits eine hohe Transparenz im sichtbaren Spektralbereich auf (T > 80%). Die Strukturierung der aktiven Fläche und der Elektroden erfolgte über ein Fotolithographieverfahren [122]. Als Ätze wurde konzentrierte Salzsäure verwendet. Die Austrittsarbeit von ITO liegt bei ca. 4,7 eV. Sie variiert je nach Herstellungsverfahren und Zusammensetzung des Mischoxids zwischen 4,5 eV und 5,1 eV [56] und lässt sich zusätzlich durch eine Plasmabehandlung leicht erhöhen (siehe Abschnitt 3.2.1).

3.1.2.3 Kathode

In Abschnitt 2.2.1 wird erläutert, dass die Austrittsarbeit des Kathodenmaterials entscheidend für eine effiziente Ladungsträgerinjektion ist. Aufgrund seiner Austrittsarbeit von -2,87 eV [123] bietet sich Calcium als Kathodenmaterial an. Mit einer geringen Austrittsarbeit gehen jedoch üblicherweise ein niedriger Schmelzpunkt und eine hohe Reaktivität einher. Um die



Abb. 3.2: (a) Chemische Strukturformeln der Makromoleküle des Materialsystems PEDOT:PSS (adaptiert aus Referenz [51]). (b) Emissionsspektrum und chemische Strukturformel des PPV-Derivats Super Yellow.

Calciumschicht vor Oxidation zu schützen, wurde deshalb eine ca. 200 nm dicke Aluminiumschicht aufgedampft. Diese sorgt zusätzlich für eine bessere thermische Leitfähigkeit der Kathodenschicht.

3.1.3 Polymer-OLEDs

Die beiden verwendeten organischen Materialien, die bei den Polymer-OLEDs zum Einsatz kamen, wurden durch das Aufschleuder-Verfahren aufgebracht (siehe hierzu Abschnitt 3.2.2).

3.1.3.1 Lochinjektions- und Lochtransportschicht: PEDOT:PSS

Das Materialsystem PEDOT:PSS besteht aus Polystyrolsulfonat (PSS) und dem konjugierten Polymer (Polyethylendioxythiophen). Die Strukturformeln der beiden Moleküle sind in Abbildung 3.2(a) dargestellt. PEDOT:PSS zeichnet sich durch seine hohe Leitfähigkeit aus und weist, in dünnen Schichten aufgebracht, eine hohe Transparenz im sichtbaren Spektralbereich auf [124]. Neben seiner Funktion als Lochinjektions- und Lochtransportschicht glättet das aufgeschleuderte PEDOT:PSS auch die Unebenheiten der ITO-Oberfläche und vermindert so die Wahrscheinlichkeit von Kurzschlüssen in der OLED. Der Zusatz PSS wird PEDOT zur besseren Wasserlöslichkeit beigemischt und führt zu einer p-Dotierung des Materials [125]. Das HOMO-Niveau von PEDOT:PSS liegt bei ca. -4.9 eV und das LUMO-Niveau bei -2,4 eV [126]. Bei einer Wellenlänge von $\lambda_0 = 550$ nm weist PEDOT einen Brechungsindex von n = 1,52 auf [51]. In dieser Arbeit wird die wässrige PEDOT:PSS-Lösung Clevios PH 500 der Firma H.C. Starck GmbH verwendet.

3.1.3.2 Emitter: Super Yellow

In den hergestellten Polymer-OLEDs kommt als Emitter das phenylsubstituierte PPV-Derivat Super Yellow (phenyl-substituted Poly(p-Phenylen-Vinylen)) zum Einsatz, das auch unter dem Namen PDY-132 bekannt ist. Wegen der sehr geringen Löslichkeit von nicht-substituiertem PPV werden Derivate verwendet. Die Strukturformel von Super Yellow und dessen Emissionsspektrum sind in Abbildung 3.2(b) dargestellt. Das Emissionsmaximum befindet sich bei einer Wellenlänge von 555 nm. HOMO- und LUMO-Niveau liegen bei etwa -5,0 eV und -2,8 eV [127]. Das verwendetet Super Yellow wurde von der Firma Merck OLED Materials GmbH bezogen und lag als orangefarbenes Pulver vor. Um Schichten durch Aufschleudern herstellen zu können, wurde es im Rahmen dieser Arbeit in einer Konzentration von 3-5 mg/ml in Toluol gelöst. Ein Ausheizen ist durch die hohe Flüchtigkeit von Toluol nicht nötig. Dünne Schichten von PPV-Derivaten weisen einen stark anisotropen Brechungsindex auf [128, 129], da sich die langen Polymerketten bevorzugt in der Schichtebene liegend anordnen. Diese Anisotropie muss bei der Berechnung der optischen Bauteileigenschaften berücksichtigt werden.

3.1.4 OLEDs aus kleinen Molekülen

Alle verwendeten Materialien für die hergestellten OLEDs aus kleinen Molekülen wurden durch thermisches Verdampfen abgeschieden (siehe Abschnitt 3.2.3).

3.1.4.1 Emitterschicht Alq₃:DCM

Als Emitterschicht kommt bei den hergestellten OLEDs aus kleinen Molekülen das Gast-Wirt-System Alq₃:DCM zum Einsatz. Der Metallchelatkomplex Alq₃ fungiert dabei als Wirt und ist mit 3 mol% des Farbstoffs DCM dotiert. Die Strukturformeln der beiden Moleküle sind in Abbildung 3.3(a) und (b) dargestellt. Alq₃ ist wohl das bekannteste Molekül aus der Gruppe der kleinen Moleküle [9, 56]. Das Materialsystem Alq₃:DCM ist sehr gut erforscht [130]. Die Energieübertragung zwischen Wirts- und Gastmolekül erfolgt sehr effizient über den nichtstrahlenden Förstertransfer [61]. Das Emissionsspektrum für die verwendete Dotierkonzentration von 3 mol% ist in Abbildung 3.3(c) dargestellt.

3.1.4.2 Transport- und Blockschichten

Lochtransportschicht α -NPD

Das Material N,N'-diphenyl-N,N'-bis(l-naphthyl)-1,1'-biphenyl-4,4'-diamine (α -NPD, NPB, α -NPB oder NPD) wird als Lochtransportschicht eingesetzt und erleichtert zudem die Injektion von Löchern. In Abbildung 3.4(a) ist die Strukturformel des Moleküls α -NPD dargestellt.



Abb. 3.3: Chemische Strukturformel von (a) Alq₃ und (b) DCM (adaptiert aus Referenz [131]). (c) Emissionsspektrum von Alq₃:DCM für die verwendete Dotierkonzentration von 3 mol% (Elektrolumineszenz einer OLED vom hier beschriebenen Typ).



Abb. 3.4: (a) Chemische Strukturformel des Moleküls N,N'-diphenyl-N,N'-bis(l-naphthyl)-1,1'-biphenyl-4,4'-diamine (α-NPD, NPB, α-NPB oder NPD), das für Lochtransport- und Elektronenblockschichten eingesetzt wird. (b) Chemische Strukturformel des Moleküls 2,9-Dimethyl-4,7-diphenyl-1,10-phenanthroline (BCP), welches sich für Lochblockschichten eignet. (jeweils adaptiert aus Referenz [132])

Wegen seines hohen LUMO-Niveaus von -2,3 eV [133] fungiert α -NPD auch als Elektronenblockschicht. Es hat eine hohe Glasübergangstemperatur von $T_g \approx 95$ °C [56], was sich positiv auf die thermische Stabilität der OLEDs auswirkt.

Lochblockschicht BCP

Das Material 2,9-Dimethyl-4,7-diphenyl-1,10-phenanthroline (BCP) weist ein HOMO-Niveau von -6,5 eV auf und eignet sich deshalb als Lochblockschicht. Die chemische Strukturformel des Moleküls BCP ist in Abbildung 3.4(b) dargestellt.

Elektroneninjektions- und Transportschicht Alq₃

Aufgrund seiner relativ hohen Eletronenbeweglichkeit von ca. $10^{-6} \text{ cm}^2/\text{Vs}$ eignet sich Alq₃ auch als Elektronentransport- bzw. Elektroneninjektionsschicht [134].

3.2 Herstellungsprozesse

In diesem Abschnitt werden die Prozessschritte und Technologien diskutiert, die zur Herstellung von nanostrukturierten OLEDs im Rahmen dieser Arbeit verwendet wurden. Dazu werden zunächst die OLED-Herstellung und die dazu verwendeten Schichtdepositionstechniken erläutert. Anschließend werden die Grundlagen der Laserinterferenzlithographie diskutiert, mit der die in dieser Arbeit verwendeten Bragg-Gitter hergestellt wurden.

3.2.1 Vorbereitungs- und Reinigungsprozesse

Der Ausgangspunkt für die OLED-Herstellung waren mit ITO vorbeschichtete Borofloatglassubstrate. Vor der weiteren Prozessierung mussten diese gereinigt werden. Durch die geringen Schichtdicken der aufgebrachten Materialien kann es ansonsten schon durch kleine Partikel zu Kurzschlüssen kommen. Zudem können Rückstände auf dem Substrat zu Defekten und beschleunigter Bauteildegradation führen. Die Substrate wurden zunächst für jeweils 15 min in Aceton und Isopropanol in einem Ultraschallbad gereinigt. Der abschließende Reinigungsschritt wurde in einem Plasmaverascher durch ein Sauerstoffplasma vorgenommen. Dies führt zu einer hydrophilen Oberfläche und bewirkt zudem eine Sättigung der Sauerstoffkonzentration an der ITO-Oberfläche [56], was die Austrittsarbeit erhöht [135–138]. Dieser Effekt ist jedoch reversibel und hält nur wenige Stunden an.

3.2.2 Aufschleudern

Ein relativ einfaches Verfahren zur Herstellung dünner Schichten ist das Aufschleudern (engl. spin-coating) eines Materials in Lösung. Dazu wird das gelöste Material auf das Substrat aufge-



Abb. 3.5: Aufschleuder-Verfahren: (a) Gelöstes Material wird auf das Substrat aufgebracht. (b) Das Substrat wird in Rotation versetzt. Die Umdrehungsgeschwindigkeit und die Viskosität der Lösung bestimmen die Schichtdicke. (c) Abschließender Ausheizschritt, abhängig vom verwendeten Lösungsmittel. (Darstellung adaptiert aus Referenz [140])

bracht, welches mittels Unterdruck an einem Halter fixiert ist. Anschließend wird das Substrat in Rotation versetzt (typischerweise mit 500-5000 Umdrehungen pro Minute). Die Lösung verteilt sich durch die Rotation gleichmäßig über das Substrat. Die resultierende Schichtdicke ist abhängig von der Umdrehungsgeschwindigkeit und der Viskosität der Lösung bzw. der Konzentration des Materials [139]. Je nach Lösungsmittel ist noch ein abschließender Ausheizschritt vonnöten. Die Prozessschritte sind in Abbildung 3.5 dargestellt. Beim Aufschleudern wird das gesamte Substrat benetzt. Eine Strukturierung ist somit nicht ohne Weiteres möglich. Durch Aufschleudern können keine beliebig dicken Schichten aufgebracht werden, ohne Zugeständnisse an die Schichtqualität zu machen. Um mehrere Schichten übereinander aufzubringen, müssen orthogonale Lösungsmittel oder vernetzbare Materialien eingesetzt werden.

3.2.3 Thermisches Verdampfen

Die Herstellung von OLEDs aus kleinen Molekülen erfolgte in dieser Arbeit durch thermisches Verdampfen der organischen Materialien und der Kathodenmaterialien. Beim thermischen Verdampfen werden die Materialien in einem Hochvakuum bei Drücken unter 10^{-6} mbar in einem Schiffchen oder Tiegel erhitzt. Die Materialien, deren Schmelz- und Siedepunkte durch den Druck reduziert werden, sublimieren und resublimieren wieder auf dem Substrat, welches oberhalb der Quellen, mit der zu beschichtenden Seite nach unten, angebracht ist. Mit einem kalibrierten Schwingquarz kann die Verdampfungsrate kontrolliert werden, so dass der Strom, der die Verdampfungstiegel erhitzt, geregelt werden kann. Dies ist in Abbildung 3.6(a) schematisch dargestellt. Durch Co-Verdampfen aus mehreren Quellen lassen sich auf diese Weise auch dotierte Schichten wie Alq₃:DCM herstellen [141]. Der Einsatz von Schattenmasken direkt unterhalb des Substrats ermöglicht eine direkte Strukturierung der aufgebrachten Schicht [122]. Schichtabfolge und Schichtdicke sind frei wählbar. In dieser Arbeit kam eine Anlage der Firma



Abb. 3.6: (a) Schematische Darstellung einer Anlage zum thermischen Verdampfen von organischen Materialien und Metallen (adaptiert aus Referenz [140]). (b) Foto der Aufdampfkammer der verwendeten Anlage.

Kurt J. Lesker zum Einsatz, die über zwei Quellen für Metalle und vier Quellen für organische Materialien verfügt. Der Substrathalter rotiert während des Aufdampfprozesses, um homogenere Schichten zu erhalten. In einem Durchlauf können in dieser Anlage neun OLED-Substrate mit je vier OLEDs prozessiert werden. Ein Foto der Aufdampfkammer der verwendeten Anlage ist in Abbildung 3.6(b) gezeigt.

3.2.4 Verkapselung

Sowohl die organischen Materialien als auch das Kathodenmaterial Calcium reagieren mit Sauerstoff und Wasser, was insbesondere während des Betriebs zu Bauteildegradation führt [38, 39]. Eigene Versuche hierzu sind in Referenz [142] zu finden. Die Aluminiumschicht stellt keine hinreichende Barriere für Sauerstoff und Wasser dar. Insbesondere dann nicht, wenn sich auf dem Substrat nach der Reinigung noch Partikel befinden, welche die Schichten lokal durchlässig machen. Daraus ergibt sich die Notwendigkeit, die OLEDs nach der Herstellung zu verkapseln. Dazu wurde der Klebstoff UHU plus endfest 300 verwendet. Dies ist ein Zweikomponenten-Klebstoff auf Epoxidharz-Basis. Beim Mischen der zwei Klebstoffkomponenten ist darauf zu achten, dass keine Blasen entstehen. In Bereichen, die nicht mit Kleber bedeckt wurden, zeigte sich in Versuchsreihen eine beschleunigte Bauteildegradation [142]. Der Klebstoff wurde daher flächig aufgebracht und mit einem Glasplättchen bedeckt, das so zugeschnitten war, dass die Kontakte frei bleiben. Damit überschüssiger Kleber nicht die Kontakte verunreinigt und unbrauchbar macht, wurde ein spezieller Halter entwickelt, bei dem der überschüssige Kleber durch Adhäsionskräfte in Bereiche gezogen wird, die für die Kontaktierung unkritisch sind.



Abb. 3.7: (a) Prinzip der Laserinterferenzlithographie (LIL): Überlagerung zweier kohärenter aufgeweiteter Laserstrahlen (als ebene Wellen dargestellt). Das entstehende Interferenzmuster dient zur Belichtung einer Fotolackschicht. (b) Schematische Darstellung des verwendeten Aufbaus zur LIL (adaptiert aus Referenz [143]).

3.2.5 Laserinterferenzlithographie zur Herstellung von Bragg-Gittern

Die in dieser Arbeit hergestellten Bragg-Gitter wurden mittels Laserinterferenzlithographie (LIL) hergestellt. Dieses Strukturierungsverfahren eignet sich zur Herstellung ein- oder zweidimensionaler periodischer Strukturen im sub- μ m-Bereich. Die LIL ist insbesondere interessant weil großflächige Substrate auf einmal belichtet werden können und sich somit Zeit- und Kostenvorteile gegenüber seriellen Verfahren ergeben. Strukturierungen von Flächen bis zu 4 m² wurde mit LIL bereits realisiert [55]. Die Strukturierung mittels LIL beruht auf der Überlagerung zweier kohärenter aufgeweiteter Laserstrahlen. Das entstehende Interferenzmuster dient zur Belichtung einer Fotolackschicht. Dieses Prinzip ist in Abbildung 3.7(a) verdeutlicht. Durch die Interferenz der beiden Teilstrahlen entsteht ein periodisches Interferenzmuster im Lack, das über anschließende Lift-Off- oder Ätzprozesse in andere Materialien übertragen werden kann. Im Rahmen dieser Arbeit wurde der positive Fotolack (AR-P 3170 der Firma Allresist) verwendet, der durch Aufschleudern aufgebracht wird. Die LIL stellt besondere Anforderungen an die Laserquelle. Um ein möglichst periodisches störungsfreies Ergebnis zu erhalten, bedarf es eines sehr schmalbandigen Lasers, der eine hohe Kohärenzlänge aufweist. Zudem ist eine hohe Leistung wünschenswert, um mit kurzen Belichtungszeiten arbeiten zu können. Für diese Arbeit kam ein Argon-Ionen-Dauerstrichlaser (Innova Sabre TSM 5) der Firma Coherent zum Einsatz. Dieser besitzt bei einer Wellenlänge von 363,8 nm eine Kohärenzlänge von ca. 100 m. Der dafür verwendete Aufbau ist in Abbildung 3.7(b) schematisch dargestellt. Der Laserstrahl wird zunächst durch einen Strahlteiler aufgeteilt. Die Teilstrahlen werden dann über Drehspiegel umgelenkt und durch Strahlaufweiter und Raumfilter geführt, bevor sie auf der Probe interferieren.

Über die Drehspiegel kann der Winkel θ der interferierenden Teilstrahlen zur Probennormalen eingestellt werden. Dies wirkt sich auf die Periode Λ des Interferenzmusters aus, die durch

$$\Lambda = \frac{\lambda}{2\sin(\theta)} \tag{3.1}$$

gegeben ist, wobei λ die Laserwellenlänge ist. Begrenzend für die Gitterperiode ist zum einen der Abstand zwischen Raumfilter und Probe für große Winkel θ und zum anderen die Ausdehnung des Lasertisches, auf dem sich der Aufbau befindet. Mit dem verwendeten Aufbau können Gitter mit Perioden zwischen 300 nm und 800 nm hergestellt werden.

3.3 Messaufbauten und Bauteilcharakterisierung

Dieser Abschnitt behandelt die Messaufbauten, die im Rahmen dieser Arbeit aufgebaut wurden, und die Methoden, mit denen die hergestellten OLEDs charakterisiert wurden. Im Rahmen dieser Arbeit wurden ein Goniometermessplatz und ein Ulbricht-Kugel-Messplatz für Relativmessungen zur Beurteilung der Effizienzsteigerung von OLEDs aufgebaut. Beide Messplätze erlauben automatisierte Messungen über eine LabVIEW-Oberfläche. Von einer Kalibration dieser Messplätze wurde zugunsten eines flexiblen Aufbaus im Laserlabor abgesehen. Dies resultierte aus den Erfahrungen mit einem bereits vorhandenen Messplatz [144]. Zu Beginn dieser Arbeit existierte am Lichttechnischen Institut bereits ein kalibriertes System zur Vermessung von OLEDs unter Stickstoffatmosphäre in einer Handschuhbox [145]. Das System erlaubt eine kalibrierte und weitgehend automatisierte Messung von Lichtstärke, Strom-Spannungs-Kennlinien und Spektren. Weitere lichttechnische Größen, wie z. B. Lichtstrom und Leuchtdichte, werden aus diesen Messergebnissen unter Annahme einer lambertschen Abstrahlcharakteristik und Kenntnis der Probenfläche abgeleitet. Das vorhandene Messsystem erwies sich jedoch als zu unflexibel und hauptsächlich auf die Vermessung von unstrukturierten OLEDs ausgerichtet. Zudem sollten neben Elektrolumineszenzmessungen auch Photolumineszenzmessungen durchgeführt werden. Die Charakterisierung von OLEDs mit den neu aufgebauten Messplätzen wird im Folgenden beschrieben.

3.3.1 Strahlungsleistung und Kennlinie

Um die gesamte von einer OLED durch das Substrat emittierte Strahlungsleistung zu messen, wurde eine Ulbricht-Kugel eingesetzt. Die verwendete Kugel der Firma Gigahertz-Optik hat einen Durchmesser von 21 cm und ist im Inneren mit Bariumsulfat beschichtet. Zur Vermessung von OLEDs werden die Substrate an der Eingangsöffnung der Kugel mit Hilfe eines Halters so befestigt, dass sie ins Innere der Kugel emittieren. Der Halter ist so konstruiert, dass die direkte Lichtemission durch das Substrat in die Kugel gelangen kann. Licht aus Substratmoden,



Abb. 3.8: (a) Foto der verwendeten Ulbricht-Kugel. (b) Schematische Darstellung des Ulbricht-Kugel-Messaufbaus.

das an den Substratkanten austritt, gelangt jedoch nicht in die Kugel. Die elektrische Kontaktierung der OLEDs ist in den Halter integriert. Eine Source-Measure-Unit (SMU) Keithley SMU 238 der Firma Keithley Instruments dient wahlweise als Strom- oder Spannungsquelle bzw. zur Messung der Kennlinien. In einer idealen Ulbricht-Kugel mit infinitesimal kleinen Einlassund Ausgangsöffnungen ergibt sich im Inneren eine homogene Beleuchtungsstärke [146]. Diese hängt vom eingestrahlten Lichtstrom bzw. der Strahlungsleistung der Lichtquelle ab und zwar unabhängig von der Winkelverteilung der Quelle und erlaubt somit eine Messung des Lichtstroms oder der Strahlungsleistung über die Beleuchtungsstärke. Im verwendeten Aufbau wird zur Messung der spektralen Beleuchtungsstärke eine Lichtleitfaser (Firma Fibertech, Kerndurchmesser $400\,\mu\text{m}$, numerische Apertur 0,22) und ein Spektrometer (Acton Research Corporation SpectraPro-300i) mit einer ICCD-Kamera (Princeton Instruments PiMax: 512) verwendet. Die Faser ist auf einen kleinen Ausschnitt des Kugelinneren gerichtet, der semitransparent ausgelegt ist. Damit kein direktes Licht von der Quelle das Detektorsegment erreicht und die Messung verfälscht, sind Einlassöffnung und Detektorsegment durch eine Blende (engl. baffle) getrennt. Die Messung der OLED wird über ein LabVIEW-Programm gesteuert, das Kamera, Spektrometer und SMU ansteuert. Abbildung 3.8(a) zeigt ein Foto der verwendeten Ulbricht-Kugel. Ein Schema des Messaufbaus ist in Abbildung 3.8(b) dargestellt. Mit diesem Aufbau können Lichtstrom und Kennlinien von OLEDs automatisiert vermessen werden. Zudem kann der Aufbau für Langzeitmessungen der Bauteildegradation eingesetzt werden.

3.3.2 Spektral- und winkelaufgelöste Elektrolumineszenz

Nach Gleichung 2.11 wird durch das Einbringen von Bragg-Gittern in OLEDs Licht der Wellenlänge λ_0 aus geführten Moden unter einem Winkel θ ausgekoppelt. Um diesen Effekt messen



Abb. 3.9: (a) Foto des probenseitigen Teils des Goniometers mit den beiden Drehtischen. (b) Über eine Drehung des unteren Drehtisches kann der Winkel zur Probennormale θ (Polarwinkel) eingestellt werden, unter dem die Lichtleitfaser auf die Probe blickt. Eine Drehung des oberen Drehtisches bewirkt eine Änderung des Azimutwinkels φ . (c) Schematische Darstellung des goniometrischen Messaufbaus.

zu können, wurde im Rahmen dieser Arbeit ein Drehtisch-Goniometer aufgebaut. Es besteht aus zwei Drehtischen (Newport URS-100BPP und Newport PR-50PP), die senkrecht zu einander angeordnet sind. In Abbildung 3.9(a) ist ein Foto des probenseitigen Teils des Goniometers mit den beiden Drehtischen dargestellt. Auf die Probe blickend befindet sich in einstellbarer Entfernung eine Lichtleitfaser, die das von der Probe emittierte Licht zu einem Spektrometer mit ICCD-Kamera führt (siehe Abschnitt 3.3.1). Über eine Drehung des unteren Drehtisches kann der Winkel zur Probennormale θ (Polarwinkel) eingestellt werden, unter dem die Lichtleitfaser auf die Probe blickt. Eine Drehung des oberen Drehtisches bewirkt eine Änderung des Azimutwinkels φ (siehe Abbildung 3.9(b)). Auf diese Weise kann durch Drehen der Probe die Lichtemission in den gesamten Halbraum spektral- und winkelaufgelöst aufgenommen werden. Über vier Linearverschiebeeinheiten ist es möglich die Probenvorderseite zu den jeweiligen Drehachsen exakt zu positionieren und die verschiedenen OLEDs eines Substrates für die Messung jeweils exakt zur Lichtleitfaser auszurichten. In Abbildung 3.9(c) ist ein Schema des Aufbaus dargestellt. Zwischen Probe und Faser kann zudem ein Polarisationfilter eingebracht werden, um z. B. zwischen ausgekoppelten TE- und TM-Moden zu unterscheiden. Wie beim Ulbricht-Kugel-Aufbau dient auch beim Goniometermessplatz eine Keithley SMU 238 der Firma Keithley Instruments als Strom- und Spannungsquelle. Die Steuerung des Messvorgangs und die Koordination zwischen SMU, Spektrometer, ICCD-Kamera und den Drehtischen wird durch ein LabVIEW-Programm vorgenommen. Messungen der gesamten Abstrahlcharakterisitk (des gesamten Halbraumes) können durch das sequentielle Messverfahren leicht einige Stunden dauern. Die dabei auftretende Bauteildegradation verfälscht die Messergebnisse. Diese können jedoch korrigiert werden, da beim Abfahren des Halbraums die Position $\theta = 0^\circ$, $\varphi = 0^\circ$ in regelmäßigen Abständen gemessen wird, was Informationen über die Bauteildegradation liefert.

3.3.3 Spektral- und winkelaufgelöste Photolumineszenz

Für Photolumineszenzmessungen an OLEDs oder OLED-ähnlichen Strukturen kann der Goniometeraufbau um eine UV-Anregequelle erweitert werden. Als Anregequelle wurde ein UV-Laser (Explorer Scientific All Solid State UV-Laser EXPL-349-120-CDRH) mit einer Wellenlänge von $\lambda = 349$ nm verwendet. Dieser Laser war im Labor bereits vorhanden und weist eine zeitlich hinreichend stabile Ausgangsleistung auf. Die Quelle muss bei der Drehung der Probe starr mit der Probe verbunden bleiben. Deshalb wird der Laser in eine UV-stabile Lichtleitfaser eingekoppelt, deren Ausgang starr mit dem unteren Drehtisch des Goniometers verbunden ist (siehe Abbildung 3.9(c)). Über eine Kollimatorlinse am Faserausgang wird eine Fläche mit einem Durchmesser von etwa 3 mm auf der Probe zur Photolumineszenz angeregt. Vor der Lichtleitfaser, die zum Spektrometer führt, ist während der PL-Messungen ein Schott GG400 Langpassfilter angebracht, um zu verhindern, dass höhere Beugungsordnungen des UV-Anregungslichts in den gemessenen Spektren zu sehen sind.

4 Simulationsmethoden

In diesem Kapitel werden die Simulationsmethoden vorgestellt, die in dieser Arbeit zur Planung und Deutung der durchgeführten Experimente Anwendung fanden. Benutzt wurden ein eigener Transfer-Matrix-Code (T-Matrix-Code), die Software FDTD Solutions¹ der Firma Lumerical sowie die Software Setfos der Firma Fluxim. Im Folgenden werden die Grundlagen dieser drei Methoden erläutert. Zudem werden für die T-Matrix- und FDTD-Methode die Besonderheiten der Anwendung in Bezug auf OLEDs diskutiert. Die Software Setfos ist bereits speziell auf die Simulation von OLEDs zugeschnitten. Der T-Matrix-Code und auch die Software FDTD Solutions sind wesentlich unspezifischer. Es ist deshalb essentiell, die Methoden richtig anzuwenden und ihre jeweiligen Grenzen zu kennen bzw. zu ermitteln, um die Simulationsergebnisse korrekt interpretieren zu können und physikalisch aussagekräftige Simulationsergebnisse zu erhalten.

4.1 Transfer-Matrix-Methode

Die T-Matrix-Methode ist eine Methode zur Berechnung von elektromagnetischen Wellen in Dünnschichtstrukturen. Dabei werden in jeder Schicht elementare Lösungen der Helmholtzgleichung zugrunde gelegt. Die T-Matrix Methode verbindet diese Lösungen über geeignet gewählte Matrizen, welche die Stetigkeitsbedingungen der elektromagnetischen Felder an den Schichtgrenzflächen sicherstellen und die Ausbreitung der Wellen innerhalb einer Schicht beschreiben. Auf diese Weise können Interferenzeffekte, Transmissions- und Reflexionskoeffizienten und auch geführte Moden berechnet werden [92, 93, 147]. Im Folgenden wird zunächst die Implementierung der Methode generell beschrieben und anschließend auf ihre Anwendung bei OLEDs eingegangen.

4.1.1 Grundlagen der T-Matrix-Methode

4.1.1.1 Feldverteilung senkrecht zu den Schichtgrenzen

Der Ausgangspunkt für die Berechnung der Ausbreitung elektromagnetischer Wellen in Dünnschichtstrukturen sind die Maxwell-Gleichungen und die zugehörigen Materialgleichungen. Wir setzen isotrope, lineare, zeitunabhängige Materialien ohne Raumladungen voraus. Wie in Abschnitt 2.3.2 bereits erläutert, lässt sich aus diesem Satz von Gleichungen, mit dem Ansatz

¹FDTD steht für engl. finite-difference time-domain



Abb. 4.1: In jeder Schicht *i* mit Brechungsindex n_i gibt es zwei elementare Lösungen, die eine vorwärts (Index *f*) und eine rückwärtslaufende ebene Welle (Index *b*) beschreiben. Dies ist hier für zwei Schichten *i* und *i* + 1 dargestellt. Weiterhin wird zwischen TE- (rechts) und TM-Polarisation (links) unterschieden (Darstellung adaptiert aus Referenz [92]).

einer harmonischen Zeitabhängigkeit der Felder, die Helmholtzgleichung 2.1 für den stationären Teil des elektrischen Feldes herleiten. Daraus ergeben sich in jeder Schicht elementare Lösungen der Form (siehe Gleichung 2.5)

$$\vec{E}_{f/b}^{TE/TM}(\vec{r},t) = E_{f/b}^{TE/TM} \cdot e^{i\left(\omega t \mp \vec{k}\vec{r}\right)} \cdot \vec{e}_{\perp \vec{k}}^{TE/TM}, \qquad (4.1)$$

die in jeder Schicht *i* eine vorwärts- (f, -) und rückwärtslaufende (b, +) ebene Welle beschreiben, die senkrecht zur Ausbreitungsrichtung \vec{k} polarisiert sind. Hierbei unterscheidet man transversal elektrische (TE) und transversal magnetische (TM) Felder. Im TE-Fall steht das elektrische, im TM-Fall das magnetische Feld senkrecht auf der Einfallsebene, die durch die Wellenvektoren \vec{k} der vorwärts- und rückwärtslaufenden Wellen aufgespannt wird. Dies ist in Abbildung 4.1 für zwei Schichten *i* und *i* + 1 dargestellt. Dabei wurde ohne Beschränkung der Allgemeinheit angenommen, dass der Wellenvektor der Felder in der *xz*-Ebene liegt. Das elektrische Feld in einer Schicht *i* ist demnach die Summe der vorwärts- und rückwärtslaufenden Feldanteile:

$$\vec{E}_{i}^{TE/TM}(z,x,t) = \vec{E}_{f,i}^{TE/TM}(z,x,t) + \vec{E}_{b,i}^{TE/TM}(z,x,t) + \vec{$$

Mit der schichtunabhängigen Propagationskonstante β (siehe hierzu Abschnitt 2.3.2) können wir

$$\vec{k}_i \vec{r} = \pm \beta x + k_{z,i} z \tag{4.2}$$

schreiben, wobei

$$k_{z,i}(\beta) = \sqrt{k_i^2 - \beta^2} \tag{4.3}$$

gilt und das Vorzeichen "+" für vorwärtslaufende und "-" für rückwärtslaufende Felder zu wählen ist². Die Propagation entlang der Schichten (in *x*-Richtung) wird durch β beschrieben. Im stationären Fall und nach Abspaltung des Propagationsanteils in *x*-Richtung³ gilt damit für die Feldverteilung als Funktion von *z* (senkrecht zu den Schichtgrenzen):

$$\vec{E}_{i}^{TE/TM}(z) = E_{f,i}^{TE/TM} \exp(-ik_{z,i}(z-z_{i})) \cdot \vec{e}_{\perp \vec{k}}^{TE/TM} + E_{b,i}^{TE/TM} \exp(ik_{z,i}(z-z_{i})) \cdot \vec{e}_{\perp \vec{k}}^{TE/TM}$$

wobei z_i hier die Phasenlage bestimmt. Für die TE-Polarisation ergibt sich mit $\vec{e}_{\perp\vec{k}}^{TE} = \vec{e}_y$:

$$E_{i}^{TE}(z) = E_{y,i}^{TE}(z)$$

= $E_{f,i}^{TE} \exp(-ik_{z,i}(z-z_{i})) + E_{b,i}^{TE} \exp(ik_{z,i}(z-z_{i})).$ (4.4)

Für TM-polarisierte Felder können ähnliche Gleichungen für die *x*- und *z*-Komponenten des elektrischen Feldes aufgestellt werden.

4.1.1.2 Matrix-Formalismus

Der T-Matrix-Formalismus koppelt nun die Feldamplituden⁴ $E_{f,i}$ und $E_{b,i}$ der Felder in der Schicht *i* mit den Feldamplituden $E_{f,i+1}$ und $E_{b,i+1}$ in der angrenzenden Schicht *i* + 1:

$$\begin{pmatrix} E_{f,i} \\ E_{b,i} \end{pmatrix} = \mathbf{P}_i(d_i) \mathbf{D}_{i,i+1} \begin{pmatrix} E_{f,i+1} \\ E_{b,i+1} \end{pmatrix}.$$

Dabei werden die Feldamplituden für jede Schicht in einen Vektor eingetragen. Zwischen den Vektoren verschiedener Schichten vermitteln Matrizen. Die Matrix $\mathbf{P}_i(d_i)$ beschreibt dabei die Ausbreitung der Felder in der Schicht *i* vom rechten Rand der Schicht bis zu einem Abstand d_i gemessen vom rechten Rand der Schicht *i*:

$$\mathbf{P}_i(d_i) = \begin{pmatrix} \exp(ik_{z,i}d_i) & 0\\ 0 & \exp(-ik_{z,i}d_i) \end{pmatrix}$$

²Es gilt $k_{x,i} = \beta$ für vorwärtslaufende Wellen und $k_{x,i} = -\beta$ für rückwärtslaufende Wellen.

³Dies ist möglich durch die unterschiedlichen Vorzeichen für vorwärts- und rückwärtslaufende Wellen in den Gleichungen 4.2 und 4.1.

⁴Die oberen Indizes "TE/TM" wurden zur besseren Lesbarkeit weggelassen. Das Folgende ist für beide Polarisationen gültig.



Abb. 4.2: Die Matrix $\mathbf{D}_{i,i+i}$ vermittelt den Übergang von der Schicht i + 1 zur Schicht i. $\mathbf{P}_i(d_i)$ beschreibt dabei die Ausbreitung der Felder in der Schicht i vom rechten Rand der Schicht bis zu einem Abstand d_i gemessen vom rechten Rand dieser Schicht. (Darstellung adaptiert aus Referenz [148])

Die Matrix $\mathbf{D}_{i,i+i}$ vermittelt den Übergang von der Schicht i+1 zur Schicht i:

$$\mathbf{D}_{i,i+1} = \frac{1}{t_{i,i+1}} \begin{pmatrix} 1 & r_{i,i+1} \\ r_{i,i+1} & 1 \end{pmatrix}.$$

wobei $t_{i,i+1}$ und $r_{i,i+1}$ die Reflexions- und Transmissionskoeffizienten der Feldamplituden sind. Die Anwendung der Matrizen $\mathbf{P}_{i,i+1}$ und $\mathbf{D}_{i,i+1}$ ist in Abbildung 4.2 schematisch dargestellt. Die Amplitudenreflexions- und Transmissionskoeffizienten ergeben sich aus der Kontinuität der Tangentialkomponenten des *E*- und *H*-Feldes an den Grenzflächen. Für den TE-Fall gibt es nur eine elektrische Feldkomponente in *y*-Richtung und man erhält:

$$r_y^{TE} = rac{k_{z,i} - k_{z,i+1}}{k_{z,i} + k_{z,i+1}}$$
 , $t_y^{TE} = rac{2k_{z,i}}{k_{z,i} + k_{z,i+1}}$

Für die TM-Polarisation muss zwischen den elektrischen Feldern in *x*- und *z*-Richtung unterschieden werden [147]:

$$\begin{aligned} r_x^{TM} &= \frac{n_{i+1}^2 k_{z,i} - n_i^2 k_{z,i+1}}{n_{i+1}^2 k_{z,i} + n_i^2 k_{z,i+1}} \quad , \qquad t_x^{TM} = \frac{2n_i^2 k_{z,i}}{n_{i+1}^2 k_{z,i} + n_i^2 k_{z,i+1}} \; , \\ r_z^{TM} &= \frac{n_i^2 k_{z,i+1} - n_{i+1}^2 k_{z,i}}{n_{i+1}^2 k_{z,i} + n_i^2 k_{z,i+1}} \; , \qquad t_z^{TM} = \frac{2n_i^2 k_{z,i+1}}{n_{i+1}^2 k_{z,i} + n_i^2 k_{z,i+1}} \; . \end{aligned}$$



Abb. 4.3: Schematische Darstellung der Berechnung der Reflexions- und Transmissionskoeffizienten eines Dünnschichtstapels mit Hilfe der T-Matrix-Methode. (Darstellung adaptiert aus Referenz [92])

Die Reflexions- und Transmissionskoeffizienten, und damit auch die Matrizen **P** und **D**, hängen über Gleichung 4.3 von β ab:

$$\mathbf{P}_{i,i+1} = \mathbf{P}_{i,i+1}(\boldsymbol{\beta}),$$

$$\mathbf{D}_{i,i+1} = \mathbf{D}_{i,i+1}(\boldsymbol{\beta}).$$

Für ein gewähltes β lassen sich somit die Felder innerhalb eines Dünnschichtstapels durch Multiplikation der entsprechenden Matrizen als Funktion der Felder am rechten Rand des Schichtstapels berechnen:

$$\begin{pmatrix} E_{f,0} \\ E_{b,0} \end{pmatrix} = \mathbf{P}_0 \mathbf{D}_{0,1} \mathbf{P}_1 \mathbf{D}_{1,2} \dots \mathbf{P}_n \mathbf{D}_{n,n+1} \begin{pmatrix} E_{f,n+1} \\ E_{b,n+1} \end{pmatrix}.$$

Dies ist in Abbildung 4.3 verdeutlicht. Hierbei wurde das rückwärts laufende Feld am rechten Rand Null gesetzt, um die globalen Reflexions- und Transmissionskoeffizienten des Dünnschichtstapels zu berechnen.

4.1.2 Anwendung der T-Matrix-Methode

4.1.2.1 Bestimmung gebundener Moden

Um zu beschreiben, wie mit der T-Matrix-Methode geführte Moden in Dünnschichtbauteilen berechnet werden können, wird zunächst beispielhaft ein einfacher Schichtwellenleiter betrachtet. Dieser besteht aus einer Hochindexschicht mit Brechungsindex $n_2 = 1.7$ und der Dicke d = 600 nm auf einem makroskopisch ($d_1 \gg d_2$) dicken Substrat mit $n_1 = 1.5$. Auf der substratabgewandten Seite befindet sich Luft mit $n_3 = 1$. Abbildung 4.4(a) zeigt den Aufbau des Wellenleiters. In Abschnitt 2.3.2 und Abbildung 2.12 wird gezeigt, dass für geführte Moden



Abb. 4.4: (a) Beispielhafter Aufbau eines Wellenleiters. Dargestellt sind zudem die TE₀- und die TE₁-Mode in dem Wellenleiter für die Wellenlänge $\lambda_0 = 600$ nm. (b) Suche nach geführten Moden im Wellenleiter, dargestellt für die TE-Polarisation. Dargestellt ist $|E_{f,0}(n_{\text{eff}})|$ im Glassubstrat. Die Minima gehören zu geführten Moden. Für diese Werte von n_{eff} geht die Amplitude des exponentiell ins Substrat ansteigenden Feldanteils gegen Null.

die Bedingung $\beta > k_0$ gelten muss. In Schichten, in denen $\beta > k_i$ ist, folgt aus Gleichung 4.3 $k_{z,i} \in \mathbb{R}$ und es ergibt sich für die jeweilige Mode nach Gleichung 4.4 ein oszillatorisches Verhalten in *z*-Richtung. In Schichten mit $\beta < k_i$ gilt $k_{z,i} \in \mathbb{C}$ und nach Gleichung 4.4 sind die Felder in diesen Schichten evaneszent⁵. In Abbildung 4.4(a) ist das jeweilige Verhalten der Felder für die drei Schichten des oben beschriebenen einfachen Wellenleiters anhand der TE₀- und der TE₁-Mode für die Wellenlänge $\lambda_0 = 600$ nm dargestellt. Um Wellenleitermoden zu finden, nimmt man deshalb am rechten Rand der Struktur nur ein vorwärtslaufendes evaneszentes Feld an. Durch Multiplikation mit den Matrizen für eine bestimmte Propagationskonstante β erhält man dann die Felder am linken Rand der Struktur, in unserem Fall im Substrat. Die Felder im Substrat weisen sowohl einen ins Substrat ansteigenden als auch einen ins Substrat abfallenden Feldanteil auf. Trägt man die Feldamplituden des ansteigenden Teils $|E_{f,0}|$ über β bzw. über $n_{\text{eff}} = \beta/k_0$ auf, so findet man in dieser Darstellung gebundene Moden bei den Minima von $|E_{f,0}(n_{\text{eff}})|$. Das ist genau dort, wo die Amplitude des exponentiell ins Substrat ansteigenden Feldanteils gegen Null geht. Abbildung 4.4(b) verdeutlicht dies. Gebundene Moden müssen demnach folgende Bedingung erfüllen:

$$\begin{pmatrix} 0 \\ E_{b,0} \end{pmatrix} = \mathbf{P}_0 \prod_{i=0}^n \mathbf{D}_{i,i+1} \mathbf{P}_{i+1} \begin{pmatrix} E_{f,n+1} \\ 0 \end{pmatrix}$$

⁵Hierbei ist zu beachten, dass in Gleichung 4.3 zwei komplexe Wurzeln mit unterschiedlichem Vorzeichen möglich sind. Physikalisch sinnvolle Lösungen liefert diejenige Wurzel, die am rechten Rand exponentiell abfallende Felder für E_f und am linken Rand einer Struktur exponentiell ansteigende Felder für E_b ergibt.



Abb. 4.5: TE₁-Mode aus dem obigen Beispiel nochmals für einen wesentlich größeren Simulationsbereich dargestellt. Auf der linken Seite kommt es zu einem exponentiellen Anstieg durch den exponentiell ansteigenden Feldanteil, der zunächst zwar klein, aber von Null verschieden ist.

Dies bedeutet, es muss numerisch das Minimum von $|E_{f,0}(n_{\text{eff}})|$ gesucht werden. An dem diskutierten Beispiel sieht man, dass die gebundenen Moden für dünne Schichten nicht kontinuierlich verteilt sind (siehe hierzu auch Abschnitt 2.3.2). Im obigen Fall waren für die TE-Polarisation nur zwei Minima von $|E_{f,0}(n_{\text{eff}})|$ und damit nur zwei geführte Moden zu finden. Für Werte von n_{eff} , die keinem Minimum entsprechen, erhält man nicht-physikalische Lösungen, die im Substrat unbegrenzt exponentiell ansteigen.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde der T-Matrix-Code in Matlab implementiert. Dabei kann der Schichtaufbau über Textdateien eingelesen werden. Da bei der Minimumsuche jeweils nur lokale Minima gefunden werden können, wird zunächst eine grobe Übersichtskarte der Funktion $|E_{f,0}(n_{eff})|$ für eine bestimmte Wellenlänge λ_0 erstellt. Dabei können Real- und Imaginärteil von n_{eff} unabhängig voneinander variiert werden. Anhand der Übersichtskarte werden interessante Startwerte für eine lokale Minimumsuche ausgewählt. Von diesen ausgehend wird dann der Matlab-eigene Minimierungsalgorithmus benutzt, um möglichst genau die effektiven Brechungsindizes der gebundenen Moden zu bestimmen. Die Modenprofile können zur Veranschaulichung graphisch dargestellt werden. Das Programm bietet zudem die Möglichkeit, nur mit reellen Brechungsindizes zu rechnen und die Modenabsorption über die Füllfaktoren in den absorbierenden Schichten zu bestimmen, was für Brechungsindizes mit kleinen Imaginärteilen eine zulässige Näherung ist [97, 103, 149]. Die Korrektheit des implementierten T-Matrix-Codes wurde anhand der Simulationsergebnisse in Referenz [150] geprüft.

4.1.2.2 Grenzen der Methode

Oben wurde gezeigt, dass die Suche nach geführten Moden im T-Matrix-Formalismus einer Suche nach den Minima von $|E_{f,0}(n_{\text{eff}})|$ entspricht. $|E_{f,0}(n_{\text{eff}})|$ ist dabei die Amplitude des exponentiell nach links ansteigenden Feldanteils. Da diese Amplitude für geführte Moden zwar sehr klein, aber von Null verschieden ist, ergibt sich in der Schicht 0 ein exponentiell ansteigender Feldanteil, der für hinreichend große Abstände d_0 dominant wird. Allgemein wird die T-Matrix-Methode für evaneszente Felder bei dicken Schichten numerisch instabil [151, 152]. Für Materialien mit komplexem Brechungsindex (absorbierende Materialien) und für Propagationskonstanten $\beta > k_i$ ist deshalb Vorsicht geboten. Für die in dieser Arbeit simulierten Bauteile wurde deshalb anhand der Feldverteilung der simulierten Moden überprüft, inwieweit der exponentiell ansteigende Feldanteil das Simulationsergebnis im relevanten Bauteilvolumen verfälscht. Ist im relevanten Volumen der Schicht 0 kein exponentieller Anstieg wahrzunehmen, bzw. sinkt die Modenintensitätsverteilung auf nahezu 0, so kann von einem vertrauenswürdigen und physikalisch sinnvollen Simulationsergebnis ausgegangen werden. In Abbildung 4.5 ist die TE₁-Mode aus dem obigen Beispiel nochmals für einen wesentlich größeren Simulationsbereich dargestellt. Auf der linken Seite im Glassubstrat kommt es zu einem exponentiellen Anstieg in negative z-Richtung. Wie oben erwähnt, ist dies bedingt durch den exponentiell ansteigenden Feldanteil, der zwar zunächst sehr klein aber dennoch von Null verschieden ist. In dem von uns betrachteten Bereich, bis ca. 1 μ m in das Substrat hinein, spielt dieser jedoch keine Rolle. Das Simulationsergebnis ist physikalisch sinnvoll und der Anstieg im linken Bereich der Schicht 0 nicht relevant für die Fragestellungen in dieser Arbeit.

4.2 Finite-Differenzen-Methode im Zeitbereich

Um die Abstrahlung eines Emitters in einer OLED und insbesondere innerhalb einer nanostrukturierten OLED mit Bragg-Gitter berechnen zu können, wird die Finite Differenzen-Methode im Zeitbereich (engl. finite-difference time-domain, FDTD) verwendet. Da die Methode im Zeitbereich (time-domain) arbeitet, ist es mit ihr möglich, über die Simulation eines geeignet gewählten Anregungspulses ein breites Frequenzspektrum mit nur einem Simulationslauf zu analysieren.

Die FDTD-Methode ist ein numerisches Verfahren zur Lösung zeitabhängiger Differentialgleichungen. Sie wird insbesondere zur Lösung der Maxwellgleichungen sehr häufig eingesetzt [153, 154]. Die Methode wurde bereits 1966 von Yee vorgestellt [155], den Namen FDTD erhielt sie 1980 durch Taflove [156]. Bei der FDTD-Methode werden Raum und Zeit in Gitterpunkte und Zeitpunkte mit äquidistanten Abständen $\Delta_x, \Delta_y, \Delta_z$ und Δ_t unterteilt. Im Rahmen dieser Diskretisierung werden die Ableitungen nach x, y, z und t durch Differenzenquotienten ersetzt. Die zeitliche Entwicklung der elektrischen und magnetischen Felder \vec{E} und \vec{H} erfolgt



Abb. 4.6: Darstellung der Yee-Zelle. In der FDTD-Methode werden \vec{E} - und \vec{H} -Felder auf zueinander um $\Delta_x/2$, $\Delta_y/2$ und $\Delta_z/2$ versetzten Gittern definiert. Diese Anordnung ist vorteilhaft, da \vec{E} und \vec{H} mathematisch über die Maxwell-Gleichungen durch Anwendung der Rotation auseinander hervorgehen.

dabei mittels eines leap-frog-Verfahrens (von englisch: leap frog, deutsch auch Halbschrittverfahren genannt). \vec{E} -Felder zum Zeitpunkt *t* ergeben sich dabei aus den \vec{E} -Feldern zum Zeitpunkt $t - \Delta_t$ und den \vec{H} -Feldern zum Zeitpunkt $t - \Delta_t/2$. Dies gilt umgekehrt ebenso für die \vec{H} -Felder, die nur bei halbzahligen Zeitschritten berechnet werden. \vec{E} und \vec{H} werden auf diese Weise jeweils zu Zeitpunkten berechnet, die um einen halben Zeitschritt $\Delta_t/2$ auseinander liegen. Zudem sind \vec{E} - und \vec{H} -Felder auf zueinander um $\Delta_x/2$, $\Delta_y/2$ und $\Delta_z/2$ versetzten Gittern definiert. Diese Anordnung wird Yee-Zelle [155] genannt und ist vorteilhaft, da \vec{E} und \vec{H} mathematisch über die Maxwell-Gleichungen durch Anwendung der Rotation auseinander hervorgehen. Abbildung 4.6 zeigt die Feldanordnung in einer Yee-Zelle in drei Dimensionen.

4.2.1 Grundlagen der FDTD-Methode

Im Folgenden wird zunächst in das Grundkonzept der FDTD-Methode eingeführt. Dabei werden die grundlegenden Update-Gleichungen des leap-frog-Verfahrens hergeleitet. Zudem wird auf die Bedeutung der räumlichen Diskretisierungsschritte, die numerische Stabilität der Methode und weitere FDTD-spezifische Eigenschaften eingegangen.

4.2.1.1 Update-Gleichungen

Ausgehend von den Maxwell-Gleichungen [94]

$$\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} + \vec{\nabla} \times \vec{E} = 0, \qquad \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} + \vec{\nabla} \times \vec{H} = \vec{j}$$

und unter Zuhilfenahme der Materialgleichungen

$$\vec{B} = \mu \vec{H}, \qquad \vec{D} = \varepsilon \vec{E}, \qquad \vec{j} = \sigma \vec{E}$$

ergeben sich sechs gekoppelte skalare Gleichungen für die Komponenten der \vec{E} - und \vec{H} -Felder. Exemplarisch sind hier zwei der sechs Gleichungen mit den Zeitableitungen der H_x - und E_x -Komponenten aufgeführt:

$$\frac{\partial H_x}{\partial t} = \frac{1}{\mu} \left(\frac{\partial E_y}{\partial z} - \frac{\partial E_z}{\partial y} \right), \qquad (4.5)$$

$$\frac{\partial E_x}{\partial t} = \frac{1}{\varepsilon} \left(\frac{\partial H_z}{\partial y} - \frac{\partial H_y}{\partial z} - \sigma E_x \right).$$
(4.6)

Die folgende Betrachtung gilt analog auch für die vier hier nicht aufgeführten Gleichungen. Die Feldkomponenten sind Funktionen des Ortes \vec{r} und der Zeit t. Ort und Zeit lassen sich mittels

$$\vec{r} = i\Delta_x \vec{e}_x + j\Delta_y \vec{e}_y + k\Delta_z \vec{e}_z, \qquad t = n\Delta_t,$$

diskretisieren, wobei Δ_x , Δ_y , Δ_z und Δ_t die Orts- und Zeitschritte sind und $n, i, j, k \in \mathbb{N}$ gilt. Somit lassen sich Funktionen des Ortes und der Zeit als

$$f(\vec{r},t) = f^{n,i,j,k}$$

schreiben. Die Ableitungen nach Zeit und Ort werden in Differenzenquotienten überführt:

$$\frac{\partial f}{\partial x} \bigg|_{x}^{n,i,j,k} \approx \frac{f^{n,i+\frac{1}{2},j,k} - f^{n,i-\frac{1}{2},j,k}}{\Delta_x}, \\ \frac{\partial f}{\partial t} \bigg|_{x}^{n,i,j,k} \approx \frac{f^{n+\frac{1}{2},i,j,k} - f^{n-\frac{1}{2},i,j,k}}{\Delta_t}.$$

Damit ergeben sich aus den Gleichungen 4.5 und 4.6 die diskretisierten Gleichungen

$$\frac{H_x^{n+\frac{1}{2},i,j,k} - H_x^{n-\frac{1}{2},i,j,k}}{\Delta_t} = \frac{1}{\mu^{i,j,k}} \left(\frac{E_y^{n,i,j,k+\frac{1}{2}} - E_y^{n,i,j,k-\frac{1}{2}}}{\Delta_z} - \frac{E_z^{n,i,j+\frac{1}{2},k} - E_z^{n,i,j-\frac{1}{2},k}}{\Delta_y} \right), \quad (4.7)$$

$$\frac{E_x^{n+1,i,j,k} - E_x^{n,i,j,k}}{\Delta_t} = \frac{1}{\varepsilon^{i,j,k}} \left(\frac{H_z^{n+\frac{1}{2},i,j+\frac{1}{2},k} - H_z^{n+\frac{1}{2},i,j-\frac{1}{2},k}}{\Delta_y} - \frac{H_y^{n+\frac{1}{2},i,j,k+\frac{1}{2}} - H_y^{n+\frac{1}{2},i,j,k-\frac{1}{2}}}{\Delta_z} - \sigma^{i,j,k} \frac{E_x^{n+1,i,j,k} + E_x^{n,i,j,k}}{2} \right). \quad (4.8)$$

52

Dabei wurde in Gleichung 4.8 die Transformation $n \mapsto n + 1/2$ vorgenommen, wodurch die \vec{E} -Felder zu ganzzahligen Zeitpunkten und die \vec{H} -Felder zu halbzahligen Zeitpunkten beschrieben werden. Um dies zu gewährleisten, wurde nach der obigen Transformation $E_x^{n+\frac{1}{2},i,j,k}$ durch

$$E_x^{n+\frac{1}{2},i,j,k} = \frac{E_x^{n+1,i,j,k} + E_x^{n,i,j,k}}{2}$$

linear interpoliert. Löst man die Gleichungen 4.7 und 4.8 nach den Feldkomponenten mit den höchsten Zeitindizes auf, ergeben sich die folgenden Update-Gleichungen für die Feldkomponenten:

$$H_{x}^{n+\frac{1}{2},i,j,k} = H_{x}^{n-\frac{1}{2},i,j,k} + \frac{\Delta_{t}}{\mu^{i,j,k}} \left(\frac{E_{y}^{n,i,j,k+\frac{1}{2}} - E_{y}^{n,i,j,k-\frac{1}{2}}}{\Delta_{z}} - \frac{E_{z}^{n,i,j+\frac{1}{2},k} - E_{z}^{n,i,j-\frac{1}{2},k}}{\Delta_{y}} \right), (4.9)$$

$$E_{x}^{n+1,i,j,k} = \alpha^{ijk} E_{x}^{n,i,j,k} + \beta^{ijk} \left(\frac{H_{z}^{n+\frac{1}{2},i,j+\frac{1}{2},k} - H_{z}^{n+\frac{1}{2},i,j-\frac{1}{2},k}}{\Delta_{y}} - \frac{H_{y}^{n+\frac{1}{2},i,j,k+\frac{1}{2}} - H_{y}^{n+\frac{1}{2},i,j,k-\frac{1}{2}}}{\Delta_{z}} \right), (4.10)$$

wobei $\alpha^{i,j,k}$ und $\beta^{i,j,k}$ materialspezifische Vorfaktoren sind:

$$lpha^{ijk} = rac{1 - rac{\sigma^{i,j,k}\Delta_t}{2arepsilon^{i,j,k}\Delta_t}}{1 + rac{\sigma^{i,j,k}\Delta_t}{2arepsilon^{i,j,k}\Delta_t}}, \qquad eta^{ijk} = rac{rac{\Delta_t}{arepsilon^{i,j,k}\Delta_t}}{1 + rac{\sigma^{i,j,k}\Delta_t}{2arepsilon^{i,j,k}\Delta_t}}$$

Gleichung 4.9 und Gleichung 4.10 haben die Eigenschaft, dass sich \vec{E} -Felder zum Zeitpunkt $t + \Delta_t$ aus den \vec{E} -Feldern zum Zeitpunkt t und den \vec{H} -Feldern zum Zeitpunkt $t + \Delta_t/2$ ergeben. \vec{H} -Felder zum Zeitpunkt $t + \Delta_t/2$ ergeben sich analog aus \vec{H} -Feldern zum Zeitpunt $t - \Delta_t/2$ und den \vec{E} -Feldern zum Zeitpunkt t. \vec{E} und \vec{H} werden auf diese Weise jeweils zu Zeitpunkten berechnet, die um einen halben Zeitschritt $\Delta_t/2$ auseinander liegen. Zudem sieht man, dass zur Berechnung von E_x bei den Indizes $i, j, k \vec{H}$ -Felder bei Indizes $i, j \pm \frac{1}{2}, k \pm \frac{1}{2}$ herangezogen werden. Dies legt nahe, \vec{E} - und \vec{H} -Felder auf zueinander um $\Delta_x/2, \Delta_y/2$ und $\Delta_z/2$ versetzten Gittern zu definieren. Dieses sogenannte Yee-Gitter wurde eingangs bereits erwähnt und ist in Abbildung 4.6 anhand einer Yee-Zelle (Einheitszelle) dargestellt.

4.2.1.2 Diskretisierung und Stabilität

Aufgrund der Diskretisierung kann es bei der FDTD-Methode zu numerischer Dispersion kommen. Damit dies nicht auftritt, muss die Diskretisierung wesentlich kleiner (um mindestens eine Größenordnung) als die kleinste im System auftretende Wellenlänge sein [153]. Allerdings muss mit jeder Verfeinerung der Ortsdiskretisierung auch eine Anpassung der Zeitkonstante Δ_t einhergehen. Um die Stabilität der Methode zu gewährleisten, muss für die sogenannte Courant-Zahl S folgende Bedingung gelten [157]:

$$S = \frac{c_{\max}\Delta_t}{\sqrt{\Delta_x^2 + \Delta_y^2 + \Delta_z^2}} < 1 \,,$$

wodurch sichergestellt ist, dass sich die Felder innerhalb eines Zeitschrittes nicht weiter als eine Gitterzelle ausbreiten. Diese Bedingung an die Zeitschritte hat zur Folge, dass die Rechenzeit einer FDTD-Berechnung in drei Dimensionen mit der vierten Potenz der Diskretisierung skaliert.

4.2.1.3 Randbedingungen

Bei der Anwendung der FDTD-Methode müssen die Randbedingungen auf das zu simulierende Problem abgestimmt werden. Hierzu stehen verschiedene Randbedingungen zur Verfügung, die im Folgenden kurz erläutert werden.

Reflektierende Randbedingungen - Das perfekte Metall (PEC und PMC)

Perfekte metallische Wände ohne Absorption und ohne Eindringtiefe stellen eine relativ einfach zu realisierende Randbedingung dar [158]. Bei dieser Art Randbedingung wird wahlweise das \vec{E} -Feld oder das \vec{H} -Feld am Rand des Simulationsgebiets auf Null gesetzt. Man spricht dann von perfekten elektrischen Leitern (englisch: perfect electric conductor, PEC) oder von perfekten magnetischen Leitern (englisch: perfect magnetic conductor, PMC).

Periodische Randbedingungen

Periodische Randbedingungen eignen sich für Probleme, bei denen sowohl das Simulationsgebiet als auch die Felder eine Periodizität aufweisen [158, 159]. Für eine Zelle der Länge *L*, die sich in *x*-Richtung periodisch fortsetzt, erfüllen die Feldkomponenten dann die Gleichung

$$f(x+L) = f(x) \,.$$

Eine Erweiterung stellen Bloch'sche periodische Randbedingungen dar, die einen Phasenshift über eine Periode hinweg erlauben:

$$f(x+L) = e^{ik_x L} f(x) \,.$$

Offene Randbedingungen (Perfectly Matched Layers, PML)

Um einen offenen Raumbereich zu simulieren, dürfen die Felder nicht von den Rändern des Simulationsgebiets reflektiert werden. Absorbierende Randbedingungen (englisch: absorbing boundary conditions, ABC) [160] sind ein einfacher und historisch gesehen früher Ansatz, um diese Anforderung zu implementieren. Diese Randbedingungen sind jedoch in zwei und drei Dimensionen limitiert, da es für beliebige Einfallswinkel und Polarisationen zu starken Reflexionen kommen kann. Abhilfe schaffen hier die so genannten perfectly matched layers (PML) [161–163]. Dies sind streng genommen keine Randbedingungen, sondern Schichten eines fiktiven unphysikalischen Materials, das über eine Impedanzanpassung Reflektionen minimiert. Durch die Diskretisierung kommt es dennoch zu geringen Reflektionen, die dadurch minimiert werden, dass die Absorption der PML-Schichten über eine gewisse Dicke langsam erhöht wird. Dennoch sind auch PML-Schichten limitiert und nicht ganz unkritisch in ihrer Anwendung [163, 164]. Durch Erweiterungen des konventionellen PML-Konzepts versucht man, dieser Probleme Herr zu werden [165].

4.2.1.4 Weitere Eigenschaften der FDTD-Methode

Materialdispersion kann nicht direkt als Tabelle $\varepsilon(\omega)$ in die FDTD-Methode eingespeist werden. Stattdessen wird auf Debye-, Drude- oder Lorentz-Modelle zurückgegriffen, um die Materialparameter anzunähern [153, 166].

Aufgrund des relativ großen Rechenaufwandes können Simulationsgebiete für die FDTD-Methode meist nicht so groß ausgelegt werden, dass Fernfelder direkt berechnet werden können. Man bedient sich deshalb üblicherweise einer Fernfeldtransformation eines berechneten Nahfeldes [153, 167].

Da die FDTD-Methode im Zeitbereich arbeitet, bietet sie die Möglichkeit, durch die Simulation eines zeitlich begrenzten Pulses, die Ergebnisse für ein breites Frequenzspektrum zu erhalten.

Das schrittweise Berechnen der Felder zu verschiedenen Zeitpunkten macht es auch möglich, animierte Darstellungen der Feldausbreitung mit FDTD zu erzeugen. Dies kann insbesondere für das Verständnis der Vorgänge in einem Bauteil sehr hilfreich sein.

4.2.2 FDTD-Simulation von OLEDs

Bei der Simulation von OLEDs mit der FDTD-Methode wurde eine Limitierung auf zweidimensionale Probleme vorgenommen. Bedingt durch die speziellen Anforderungen, die OLEDs mit Bragg-Gittern an das Simulationsmodell stellen, ist die Simulation in drei Dimensionen sehr zeitaufwändig und ermöglicht daher kaum Iterations- oder Optimierungsschleifen. Die Simulation in zwei Dimensionen ermöglicht die Betrachtung eindimensionaler Bragg-Gitter und deren



Abb. 4.7: Aufbau des verwendeten Simulationsmodells in schematischer Darstellung. Die Simulation der Schichten von der Kathode bis hin zur Grenze von ITO und Glassubstrat wird mit der FDTD-Methode durchgeführt. Danach wird eine Fernfeldtransformation angewandt. Zudem muss der Übergang von Glas zu Luft berücksichtigt werden.

Einfluss auf die Modenextraktion aus OLEDs. Eine Betrachtung der Gesamteffizienz ist damit jedoch nicht möglich. Die Besonderheiten der OLED-Simulation mit der FDTD-Methode und das verwendete Modell werden im Folgenden diskutiert.

In Abbildung 4.7 ist der Aufbau des verwendeten Simulationsmodells schematisch dargestellt. Im unteren Teil sind die verschiedenen Schichten einer OLED zu sehen. Die Simulation der Schichten von der Kathode bis hin zur Grenze zwischen ITO und Glassubstrat wird mit der FDTD-Methode durchgeführt. Dazu werden in der Emitterschicht Dipole platziert, die für die emittierenden Exzitonen stehen. Knapp oberhalb der ITO-Schicht (einen Gitterschritt) befindet sich ein Nahfeldmonitor im Glassubstrat, der die simulierte Feldverteilung im Nahbereich der OLED aufzeichnet⁶. Anschließend wird die Fernfeldtransformation der Software FDTD-Solutions angewandt, um aus den Nahfeldern die Abstrahlcharakteristik im Glassubstrat zu errechnen. An der Grenzschicht von Glas zu Luft müssen zwei Effekte berücksichtigt werden. Zum einen wird ein Teil der Intensität ins Substrat zurückreflektiert. Der direkt transmittierte Anteil kann über die Fresnel-Gleichungen berechnet werden. Der ins Bauteil zurückreflektierte

⁶Eine Platzierung des Monitors direkt an der Grenzschicht von ITO zum Glassubstrat erwies sich als nicht sinnvoll. Dabei traten numerische Artefakte auf, die laut Lumerical auf evaneszente Felder zurückzuführen sind.

Anteil des Lichts erhält durch Reflexion an der Metallkathode ggf. noch mehrfach die Möglichkeit das Bauteil zu verlassen. Zusätzlich müssen die Verhältnisse der Raumwinkel im Glas und außerhalb des Bauteils mitberücksichtigt werden (siehe auch 2.3.1). Für zweidimensionale Simulationen ist dieser Faktor gegeben durch die Ableitung des Winkels in Glas θ_g nach dem Winkel in Luft θ_{ext} :

$$\frac{\partial \theta_{\rm g}}{\partial \theta_{\rm ext}} = \frac{\cos \theta_{\rm ext}}{\sqrt{n_{\rm g}^2 - \sin^2 \theta_{\rm ext}}},\tag{4.11}$$

wobei $n_{\rm g}$ der Brechungsindex von Glas ist.

In OLEDs mit kleinen Molekülen liegt typischerweise ein Emitterensemble mit isotrop verteilten inkohärenten Dipolmomenten vor. Als Emitter werden in der FDTD-Methode Dipole eingesetzt. Um eine isotrope Quelle (Quellenverteilung) zu erhalten, werden drei orthogonale Dipole simuliert und inkohärent überlagert. Dies bedeutet, dass drei Simulationen mit jeweils einem Dipol durchgeführt werden und die Intensitäten anschließend addiert werden. Obwohl diese Quelle im Vakuum isotrop abstrahlt, erhält man auf diese Weise innerhalb eines Bauteils im Allgemeinen keine isotrope Abstrahlung. Die Abstrahlung ist eine Funktion der Umgebung und dieser Zusammenhang wird in der FDTD-Methode mitberücksichtigt (siehe hierzu Abschnitt 2.3.4).

Durch den zweidimensionalen Simulationsaufbau ergibt sich in der Software FDTD-Solutions mit dem verwendeten Dipol-Modell ein Ungleichgewicht zwischen TE- und TM-Abstrahlung. Deshalb müssen die Intensitäten des TE-Dipols mit einem Faktor 2 multipliziert werden, um eine unpolarisierte Quelle zu erhalten. Hierbei ist zu beachten, dass die Bezeichnungen TE und TM in der Software FDTD-Solutions gerade invers gebraucht werden bzw. sich auf eine andere Referenzebene beziehen als die Konvention in dieser Arbeit. Wird eine OLED mit Bragg-Gittern simuliert, so ist zudem die Position der Emitter bzgl. des Gitters zu bedenken. Deshalb werden jeweils Simulationen mit den Emittern unterhalb eines "Gittertals" und unterhalb eines "Gitterberges" durchgeführt. Aus Symmetriegründen werden die Emitter dabei jeweils in der Mitte des Simulationsbereiches belassen und die Bragg-Gitter werden um eine halbe Gitterkonstante verschoben.

Das Simulationsgebiet beträgt zu beiden Seiten der Emitter mindestens $20 \,\mu$ m. Auf diese Weise wird sichergestellt, dass die gebundenen Moden mit dem Bragg-Gitter interagieren und ausgekoppelt werden können. T-Matrix-Simulationen ergaben mittlere freie Weglängen der OLED-Moden in der Größenordnung von $\leq 15 \,\mu$ m.

Für den Aufbau der FDTD-Simulation wurden PML-Randbedingungen gewählt. Metallische Randbedingungen scheiden aus, da diese nicht den Gegebenheiten im Bauteil entsprechen würden. Auch periodische Randbedingungen sind für die Simulation eines Emitters in OLEDs mit Bragg-Gittern nicht geeignet. Die räumliche Periodizität der Gitter könnte zwar dazu verleiten, nur eine Einheitszelle simulieren zu wollen. Dies käme jedoch auch einer periodischen Fortset-



Abb. 4.8: Simulationen der Emission eines isotrop emittierenden Emitters im Vakuum für verschiedene Anzahlen von PML-Schichten. Der Emitter ist aus drei Dipolen aufgebaut, die unabhängig voneinander simuliert werden müssen. Durch Erhöhung der PML-Anzahl verschwinden die Oszillationen, da Reflektionen der Felder an den Rändern des Simulationsgebietes unterdrückt werden.

zung der Emitter gleich, die dann perfekt in Phase abstrahlen und auf diese Weise interferieren würden. Ein Emitter, der inkohärent zu anderen Emittern abstrahlt und sich in einem räumlich ausgedehnten Simulationsgebiet befindet, ist deshalb nur über PML-Randbedingungen darstellbar. In der verwendeten Software kann die Anzahl der verwendeten PML-Schichten eingestellt werden. In Abbildung 4.8 sind beispielhaft Simulationen der Emission eines isotrop emittierenden Emitters im Vakuum für verschiedene Anzahlen von PML-Schichten dargestellt. Der Emitter ist, wie oben beschrieben, aus drei Dipolen aufgebaut, die unabhängig voneinander simuliert wurden. Es ist zu erkennen, dass für zehn PML-Schichten Oszillationen das Simulationsergebnis überlagern. Durch Erhöhung der PML-Anzahl verschwinden diese Oszillationen, da Reflektionen der Felder an den Ränder des Simulationsgebietes unterdrückt werden. In Abbildung 4.9 ist zudem der Einfluss der Diskretisierung auf die Simulationsergebnisse gezeigt. Wiederum wurden drei orthogonale Dipole inkohärent überlagert. Für grobe Diskretisierungen ist eine deutliche Abweichung von der erwarteten isotropen Abstrahlung zu sehen. Die verbleibenden Artefakte bei großen Winkeln waren auch nach Rücksprache mit der Firma Lumerical



Abb. 4.9: Simulationen der Emission eines isotrop emittierenden Emitters im Vakuum: Einfluss der Diskretisierung auf die Simulationsergebnisse. Für grobe Diskretisierungen ist eine deutliche Abweichung von der erwarteten isotropen Abstrahlung zu sehen.

für Dipole im Vakuum nicht zu eliminieren. Bei der Simulation von OLEDs und der Anwendung der Fernfeldtransformation treten diese jedoch nicht auf.

4.3 SETFOS

Das Programm SETFOS (englisch: Semiconducting Thin Film Optics Simulator) der Firma Fluxim erlaubt die elektrische und optische Simulation von Dünnschichtbauelementen [168]. Im Rahmen dieser Arbeit wird das Emissions-Modul von Setfos benutzt. Dazu wird eine Emissionszone innerhalb der OLED definiert. Emissionsspektrum sowie der Schichtaufbau inklusive der optischen Materialparameter werden angegeben. Darauf basierend berechnet Setfos die winkel- und wellenlängenabhängige Emission der OLED. Dabei wird auch die Emission in Wellenleitermoden mitberücksichtigt. Als Ergebnis erhält man somit die Abstrahlung als eine Funktion der Propagationskonstante β bzw. des effektiven Brechungsindex n_{eff} , die beide als verallgemeinerte Winkel aufgefasst werden können. Auf diese Weise kann ermittelt werden, in welche Mode bzw. in welchen Winkelbereich welcher Anteil der abgestrahlten Leistung emittiert wird. Das Modell, das den optischen Setfos-Simulationen zugrunde liegt, geht auf Chance, Prock und Silbey zurück [112] und wurde von Barnes in [113] und Nowy in [169] eingehend beschrieben. Dabei wird ein angeregtes Exziton als klassischer, getriebener und gedämpfter harmonischer Oszillator modelliert. Die Bewegungsgleichung für das Dipolmoment p des emittierenden Dipols ist gegeben durch:

$$\frac{d^2p}{dt^2} + \omega_0^2 p = \frac{e^2}{m} E_r - b_0 \frac{dp}{dt},$$

wobei ω_0 die Resonanzfrequenz des ungedämpften Systems, *m* die effektive Masse und *e* die Elementarladung eines Elektrons ist. E_r ist das elektrische Feld an der Stelle des Dipols, das von der Umgebung zurückreflektiert wird. b_0 beschreibt die Dämpfung des Dipols im Vakuum bzw. die radiative Zerfallsrate. Es lässt sich nun zeigen, dass die effektive Zerfallsrate *b* eines Dipols in einer reflektierenden Umgebung gegeben ist durch [112, 113]:

$$\frac{b}{b_0} = 1 + \frac{e^2}{m\omega p_0 b_0} \operatorname{Im}(E_0)$$

wobei E_0 die komplexe Amplitude des reflektierten Feldes $E_r = E_0[-i(\omega - ib/2)t]$ und p_0 die Anfangsamplitude des oszillierenden Dipols ist. Die effektive Zerfallsrate *b* ist das Inverse der Lebensdauer des Dipols. Die Beziehung $b(E_0)$ lässt sich in eine Abhängigkeit der Rate *b* von den Fresnel-Reflexionskoeffizienten $r(\beta)$ der Schichtstruktur überführen [112, 113, 170–172]:

$$b = b(F),$$

$$F = \int_0^\infty f(\beta, r(\beta)) d\beta$$

Die Zerfallsrate ist demnach eine Funktion eines Integrals F über eine Funktion $f(\beta, r(\beta))$. Dabei wird eine Integration über alle Emissionswinkel bzw. Propagationskonstanten β ausgeführt. Über eine Betrachtung des Integranden in infinitesimalen Bereichen $d\beta$ kann somit bestimmt werden, welcher Anteil der abgestrahlten Gesamtleistung in welchen Emissionswinkel bzw. in welche Mode β emittiert wird. Aus der Kenntnis der Reflexionskoeffizienten der Struktur, die den Dipol umgibt, kann somit die winkel- und wellenlängenabhängige Emission ermittelt werden. Die Reflexionskoeffizienten wiederum können für Mehrschichtsysteme mit Hilfe der T-Matrix-Methode ermittelt werden (siehe Abschnitt 4.1).

5 Bragg-Gitter in ITO-Anoden

In diesem Kapitel werden Bragg-Gitter in ITO-Anoden von Aufdampf-OLEDs aus kleinen Molekülen untersucht.¹ Die Verwendung von Gitterstrukturen dient dazu, durch Bragg-Streuung geführte Moden aus den OLEDs auszukoppeln (siehe Abschnitt 2.4). Unter den verwendeten OLED-Materialien weist die ITO-Anode einen vergleichsweise hohen Brechungsindex auf. Dadurch ist typischerweise insbesondere der Füllfaktor der TE₀-Mode in der ITO-Schicht recht hoch [48]. Deshalb wurde die Oberseite der ITO-Anode als Ort für die Strukturierung gewählt, um eine effiziente Auskopplung durch die Bragg-Gitter zu erzielen.

Die Bragg-Gitter wurden mit einem kombinierten Verfahren aus Laserinterferenzlithographie (LIL) und physikalischem Plasmaätzen hergestellt.² Ein Vorteil der gewählten Herstellungstechnologien besteht in ihrer Skalierbarkeit bis hin zu großflächigen industriellen Anwendungen. So wurde gezeigt, dass sich mit LIL Flächen bis zu 4 m² strukturieren lassen [55].

Im Rahmen der hier diskutierten Untersuchungen wurden OLEDs mit ein- und zweidimensionalen Bragg-Gittern hergestellt und eine Charakterisierung der Gitterstrukturen (Abschnitt 5.1.3) und der hergestellten OLEDs durchgeführt (Abschnitt 5.2). Die experimentellen Ergebnisse für OLEDs mit verschiedenen Gitterperioden werden in den Abschnitten 5.3 und 5.4 mit T-Matrix- und FDTD-Simulationen der Bauteile verglichen. Diese beleuchten insbesondere die verschiedenen geführten Moden im Bauteil und deren Auskopplung durch die Bragg-Gitter. Zudem wird in Abschnitt 5.5.1 der Einfluss der Gittertiefe experimentell und simulativ behandelt. In Abschnitt 5.5.2 werden abschließend Untersuchungen zur Bauteileffizienz der hergestellten OLEDs mit Bragg-Gittern diskutiert.

5.1 Herstellung

Im Folgenden wird die Herstellung der OLEDs aus kleinen Molekülen sowie die Herstellung der Bragg-Gitter und deren experimentelle Charakterisierung beschrieben. Weitere Details zu den verwendeten Materialien und Prozessen sind in Kapitel 3 zu finden.

¹Teile der Ergebnisse dieses Kapitels wurden bereits in den Referenzen [173–176] veröffentlicht.

²Die Auslegung der Gitterstrukturen und OLEDs, der Aufbau der Messsysteme, die Vermessung der Bauteile sowie die Bauteilsimulation und die Interpretation der Ergebnisse anhand der Simulationen waren Gegenstand dieser Arbeit. Die Entwicklung der technologischen Prozesse zur Herstellung der Bragg-Gitter in ITO durch Laserinterferenzlithographie (siehe Abschnitt 5.1.2 und 5.1.3) wurde in Zusammenarbeit mit Ulf Geyer durchgeführt und ist in dessen Dissertation ausführlich beschrieben [143].



Abb. 5.1: Aufbau der hergestellten OLEDs aus kleinen Molekülen. Es handelt sich hierbei um Bottomemission-Bauteile, bei denen die Lichtemission durch die Substratseite erfolgt. Der Ausgangspunkt für die OLED-Herstellung war ein mit ITO vorbeschichtetes Glassubstrat. Alle weiteren verwendeten Materialien wurden durch thermisches Verdampfen abgeschieden.

5.1.1 OLED-Herstellung

In Abbildung 5.1 ist der Aufbau der verwendeten OLEDs aus kleinen Molekülen dargestellt. Es handelt sich hierbei um Bottom-emission-Bauteile, bei denen die Lichtemission durch die Substratseite erfolgt. Der Ausgangspunkt für die OLED-Herstellung war ein mit ITO vorbeschichtetes Glassubstrat. Die Dicke der ITO-Anoden betrug 130 nm. Alle weiteren verwendeten Materialien wurden durch thermisches Verdampfen abgeschieden (siehe Abschnitt 3.2.3). Auf das mit ITO vorbeschichtete Substrat wurde zunächst eine 50 nm dicke Lochtransportschicht aus α -NPD aufgebracht, die auch die Injektion von Löchern erleichtert. Zudem stellt α -NPD wegen seines hohen LUMO-Niveaus von -2,3 eV eine Elektronenblockschicht dar [133]. Auf α -NPD folgten 25 nm des Emittermaterials Alq₃:DCM, wobei eine Dotierung von 3 mol% des Farbstoffs DCM verwendet wurde. Dadurch ergab sich eine Bauteilemission mit einem spektralen Maximum bei ca. $\lambda_0 = 600$ nm. Nach der Emitterschicht wurde eine 25 nm dicke Schicht BCP aufgebracht. BCP fungiert durch sein HOMO-Niveau von -6,5 eV als Lochblockschicht. Eine 20 nm dicke Schicht Alq3 sorgte schließlich als Elektroneninjektions- und Transportschicht für einen guten Kontakt zur Kathode. Zudem vergrößert diese Schicht den Abstand der Emissionszone zur Kathode und unterdrückt dadurch quenching-Prozesse durch die Metallkathode. Die Kathode besteht aus einer Calciumschicht gefolgt von Aluminium. Die HOMOund LUMO-Niveaus der verwendeten Materialien sind in Abbildung 5.2(a) dargestellt und den Referenzen [56, 123, 133, 177] entnommen. Auf einem Substrat wurden jeweils vier OLEDs mit einer aktiven Fläche von je $5 \text{ mm} \times 5 \text{ mm}$ hergestellt. Für eine detailliertere Beschreibung des Probendesigns sei auf die Referenzen [142, 145] verwiesen. Nach der Herstellung wurden die Substrate verkapselt (siehe Abschnitt 3.2.4), um eine Charakterisierung unter Umgebungs-



Abb. 5.2: (a) HOMO- und LUMO-Niveaus der verwendeten Materialien. (b) Vier leuchtenden OLEDs mit einer aktiven Fläche von je 5 mm × 5 mm auf einem Substrat.

bedingungen zu erlauben. Abbildung 5.2(b) zeigt ein hergestelltes Substrat mit vier OLEDs im Betrieb.

5.1.2 Gitterherstellung

Die Herstellung der Gitter erfolgte durch eine Kombination aus Laserinterferenzlithographie und physikalischem Plasmaätzen. Dieses Verfahren wurde von Ulf Geyer entwickelt und ist in [143] beschrieben. In Abbildung 5.3 sind die verschiedenen Prozessschritte zur Herstellung der ITO-Gitter dargestellt. Zunächst wurde das mit ITO vorbeschichtete Glassubstrat der Grö-Be $25 \text{ mm} \times 25 \text{ mm}$ mit Hilfe des Aufschleuder-Verfahrens mit einer 200 nm dicken Schicht des Positivfotolacks Allresist AR-P 3170 versehen. Zur Verbesserung der Haftung des Fotolacks wurde eine Monolage HMDS (Hexamethyldisilazan) als Haftvermittler für den hydrophoben Fotolack aufgebracht. Dies geschah in einem Exsikkator, in dem das Substrat HMDS-Dämpfen ausgesetzt wurde. Nach dem Aufbringen des Fotolacks erfolgte eine Belichtung mittels Laserinterferenzlithographie. Bei der anschließenden Entwicklung des Lacks lösen sich die belichteten Bereiche ab. Durch Einstellen des Winkels zwischen den beiden Teilstrahlen konnte bei der Laserinterferenzlithographie jeweils die gewünschte Gitterperiode gewählt werden (siehe Abschnitt 3.2.5). Für die Herstellung zweidimensionaler Gitter wurde die Probe nach einer ersten Belichtung mit halber Dosis um 90° gedreht und ein weiteres Mal belichtet. Da sich der Fotolack nicht direkt als Ätzmaske eignet, wurde auf den Fotolack eine 50nm dicke Chromschicht aufgedampft, die nach einem Lift-off-Schritt als Ätzmaske diente. Nach dem physikalischen Ätzen durch ein Argon-Plasma wurde die Chromschicht mit Hilfe einer nasschemischen



Abb. 5.3: Herstellung der Bragg-Gitter in der ITO-Schicht. (1) Aufbringen einer Monolage HMDS (Hexamethyldisilazan) als Haftvermittler für den hydrophoben Fotolack. (2) Aufschleudern des Fotolacks. (3) Belichtung mittels Laserinterferenzlithographie. (4) Entwicklung des Fotolacks.
(5) Aufdampfen einer Chromschicht. (6) Lift-off-Schritt. (7) Ätzprozess mit Argon-Plasma.
(8) ITO-Gitter nach Entfernen der Chrommaske mit Hilfe einer nasschemische Chromätze.


Abb. 5.4: Ätztiefe in ITO über der Ätzzeit. Nach ca. 235s ist die 130nm dicke ITO-Schicht abgetragen und der Abtrag geht verlangsamt im Glassubstrat weiter. (adaptiert aus Referenz [143])

Chromätze (Microposit Chrometch 18) entfernt. Die Chromätze hat keinen Einfluss auf das ITO. In Abbildung 5.4 ist die Ätztiefe in ITO über der Ätzzeit aufgetragen. Nach ca. 235 s ist die 130nm dicke ITO-Schicht abgetragen und der Abtrag geht verlangsamt im Glassubstrat weiter. Zunächst wurden OLEDs mit einer Gittertiefe von 40-50nm hergestellt, was einer Ätzzeit von 100s entspricht. Die Gitter sollten einerseits tief genug sein, um Moden effizient zu streuen [178], andererseits sind für sehr tiefe Gitter aufgrund der veränderten elektrischen Bauteileigenschafen geringere Gesamteffizienzen zu erwarten, was sich bei einer Variation der Gittertiefe auch herausstellte (siehe Abschnitt 5.5.1).

5.1.3 Gittercharakterisierung

Um die Qualität der Gitter zu bestimmen, wurden diese mit einem Rasterelektronenmikroskop (REM; englisch: scanning electron microscope, SEM) untersucht. In Abbildung 5.5 sind REM-Aufnahmen von ein- und zweidimensionalen Gittern in ITO zusehen. Die Periode der dargestellten Gitter beträgt jeweils 350nm. Zur Untersuchung der Topologie der ITO-Gitter wurde ein Rasterkraftmikroskop (englisch: atomic force microscope, AFM) Nano Wizard II der Firma JPK verwendet. Dieses AFM erreicht eine Höhengenauigkeit von unter 1 nm. In Abbildung 5.6(a) ist eine AFM-Aufnahme eines zweidimensionalen Gitters in ITO dargestellt. Abbildung 5.6(b) zeigt das Profil des zweidimensionalen Gitters, aus dem eine Gittertiefe von etwa 50 nm ermittelt werden kann. Bei mehreren Messungen auf einem einzelnen Substrat war die Standardabweichung der ermittelten Höhe geringer als 5 nm. Die Homogenität der Gitterstrukturen inklusive ihrer Periodizität, der Tiefe und des Tastverhältnisses lassen sich durch eine Methode untersuchen, die die Resonanzen geführter Moden in den hergestellten Gitterstrukturen analy-



Abb. 5.5: REM-Aufnahmen von Gittern in ITO: (a) eindimensionale Gitter, (b) zweidimensionale Gitter. Die Periode der dargestellten Gitter beträgt jeweils 350 nm.



Abb. 5.6: (a) AFM-Aufnahme eines zweidimensionalen Gitters in ITO. (b) Profil des zweidimensionalen Gitters, aus dem eine Gittertiefe von etwa 50 nm ermittelt werden kann.



Abb. 5.7: Flächenwiderstand R_{\Box} der ITO-Schicht als Funktion der Schichtdicke. Bis zu einer Dicke von 40 nm zeigt sich ein ohmsches Verhalten gemäß $R_{\Box} = \rho/d$. (adaptiert aus Referenz [143])

siert [179]. Über eine Distanz von 5 mm war ein Drift dieser Resonanzen von nur 2 nm messbar, was einer relativen Verschiebung von $\Delta\lambda/\lambda = 0,4\%$ entspricht [173].

Da die ITO-Schicht in den OLEDs als Anode fungiert, ist bei Gitter-OLEDs mit veränderten elektrischen Eigenschaften zu rechnen. Die Auswirkungen des Materialabtrags auf den Flächenwiderstand R_{\Box} der ITO-Schicht wurden in einem Vierpunkt-Messplatz untersucht [180]. In Abbildung 5.7 ist zu sehen, dass die verbleibende Schicht bis zu einer Dicke von 40nm ein ohmsches Verhalten gemäß $R_{\Box} = \rho/d$ zeigt [181], wobei ρ der spezifische Widerstand und *d* die Dicke des Materials ist.

5.2 Experimentelle Ergebnisse

Es wurden verschiedene OLEDs mit ein- und zweidimensionlen Bragg-Gittern hergestellt. Die Gitterperiode wurde dabei zwischen 300 nm und 600 nm variiert. In Abbildung 5.8(a) ist das REM-Bild eines FIB-Schnittes (englisch: focussed ion beam, FIB) durch eine OLED mit einem eindimensionalen Bragg-Gitter zu sehen. Die Gitterperiode beträgt $\Lambda_x = 300$ nm und die Gittertiefe 70 nm. Man sieht, dass die Gitterflanken nicht senkrecht stehen, sondern einen Winkel von ca. 30° zur Normalen der Substratoberfläche aufweisen, was positiv für die Funktion der nachfolgenden OLED-Schichten ist. Bedingt durch den Aufdampfprozess, der zur Abscheidung der OLED-Materialien verwendet wurde, drückt sich die Gitterperiodizität bis hin zur Metallkathode durch. Abbildung 5.8(b) zeigt eine großflächige REM-Aufnahme einer OLED-Kathode. Auch hier ist die Periodizität der Kathode gut zu erkennen. Die Bragg-Gitter wirken in Reflexi-



Abb. 5.8: (a) REM-Bild eines FIB-Schnittes durch eine OLED mit einem eindimensionalen Bragg-Gitter mit Periode $\Lambda_x = 300$ nm und Gittertiefe 70 nm. (b) großflächige REM-Aufnahme einer OLED-Kathode inklusive eines FIB-Schnittes. (c) Fotografie einer strukturierten OLED. Durch Beugung des einfallenden Lichtes an den Bragg-Gittern ergibt sich ein typischer schillernder Glanz.



Abb. 5.9: Goniometrische Messung: Der Polarwinkel θ zur Normalen der Substratoberfläche und der Azimutwinkel φ können getrennt von einander variiert werden. Im verwendeten Goniometermessplatz wird die OLED relativ zu einem ortsfesten Lichtwellenleiter gedreht. Weitere Details zu dem verwendeten Messplatz sind in Abschnitt 3.3.2 zu finden.

on wie Beugungsgitter und verleihen den strukturierten OLEDs einen schillernden Glanz (siehe Abbildung 5.8(c)).

Zur Vermessung der winkelaufgelösten und spektralen Bauteilemission wurde zunächst auf ein Schwenkarm-Goniometer zurückgegriffen, das in [144] eingehend beschrieben ist. Bei diesem Aufbau wird eine Multimode-Glasfaser (Kerndurchmesser 400 μ m) um das zu vermessende ortsfeste Bauteil herumgeführt. Das durch die Glasfaser eingefangene Licht wird schließlich mit einem Spektrometer (Acton Research Corporation SpectraPro-300i) analysiert. Mit diesem Aufbau war jedoch nur ein eingeschränkter Winkelbereich messbar. Deshalb wurde im Rahmen dieser Arbeit ein neuer Goniometermessplatz aufgebaut, der sich insbesondere bei Messungen über den vollen Halbraum als sehr vorteilhaft erwies. Bei diesem neuen Aufbau wird die OLED relativ zu einem ortsfesten Lichtwellenleiter gedreht. Details zu dem verwendeten Messplatz sind in Abschnitt 3.3.2 zu finden. Bei der goniometrischen Messung können der Polarwinkel θ zur Normalen der Substratoberfläche und der Azimutwinkel φ getrennt voneinander variiert werden. In Abbildung 5.9 sind die beiden Winkel dargestellt.

Abbildung 5.10(a) zeigt die Emission einer strukturierten OLED in den gesamten Halbraum bei einer Wellenlänge von $\lambda_0 = 600$ nm. Die OLED hat ein eindimensionales Bragg-Gitter der Periode $\Lambda_x = 550$ nm. Deutlich sind vertikale Streifen bzw. Maxima bei gewissen Winkeln (z.B. bei $\varphi = 0^\circ$, $\theta \approx 32^\circ$) zu erkennen, die sich durch Auskopplung von geführten Moden aus der OLED ergeben. Zusätzlich sind weitere weit schwächere Maxima zu erkennen, die auf weitere Moden oder Bragg-Streuung höherer Ordnung hindeuten. Messungen wie in Abbildung 5.10(a) gezeigt, dauern mit der oben beschriebenen Messmethode, bei der der Halbraum sequentiell abgefahren wird, bis zu 12 Stunden. Während dieser Zeit kommt es bei den verwendeten OLEDs zu Degradationseffekten. Für die Abbildung 5.10(a) wurde dieser Effekte herausgerechnet (sie-



Abb. 5.10: (a) Emission einer strukturierten OLED in den gesamten Halbraum bei einer Wellenlänge von λ₀ = 600 nm. Die OLED hat ein eindimensionales Bragg-Gitter der Periode Λ_x = 550 nm. (b) Emission der OLED, dargestellt ohne die Korrektur der Bauteildegradation während der Messung.

he hierzu auch Abschnitt 3.3.2). In Abbildung 5.10(b) ist zum Vergleich die Messung der selben OLED mit eindimensionalem Bragg-Gitter ohne die Korrektur der Bauteildegradation während der Messung dargestellt. Die Abbildungen 5.11(a)-(c) zeigen die Emission einer OLED mit einem zweidimensionalen Gitter der Periode $\Lambda_x = 550$ nm für verschiedene emittierte Wellenlängen. Durch das zweidimensionale Gitter sind hier neben vertikalen Maxima auch Maxima in Form von horizontalen Streifen erkennbar. Weiterhin wird deutlich, dass die Position der Maxima von der Wellenlänge abhängig ist.

Im Folgenden sollen die Erhöhungen im Emissionsspektrum der strukturierten OLEDs bestimmten geführten Moden zugeordnet werden. Dazu wird das Emissionsspektrum als Funktion des Polarwinkels θ aufgetragen. Der Azimutwinkel wurde dabei zu $\varphi = 0^{\circ}$ gewählt, so dass die betrachtete Einfallsebene³ den reziproken Gittervektor $\vec{G} = G \cdot \vec{e}_x$ enthält. Diese Anordnung ist in Abbildung 5.12 dargestellt. Abbildung 5.13 zeigt Falschfarbendarstellungen dieser Messungen an OLEDs mit eindimensionalen Bragg-Gittern. Dabei wurde die Intensität der Emission als Funktion der Wellenlänge λ_0 und des Polarwinkels θ aufgetragen. Die Messergebnisse stammen von einer unstrukturierten OLED und sieben OLEDs mit Bragg-Gittern mit Gitterperioden von 600 nm bis 300 nm. Die unstrukturierte OLED zeigt ein Maximum des Emissionspektrums bei ca. $\lambda = 600$ nm und einem Winkel von $\theta = 0^{\circ}$. Zu hohen Winkeln hin fällt die Emission des unstrukturierten Bauteils in der typischen Art und Weise lambertsch ab (siehe Abschnitt 2.3.1). Die OLEDs mit Bragg-Gittern in der ITO-Anode zeigen dagegen Maxima bei Auskoppelwin-

³Obwohl in diesem Fall kein Licht einfällt, sondern emittiert wird, wird hier der Begriff Einfallsebene verwendet.



Abb. 5.11: Emission einer OLED mit einem zweidimensionalen Gitter der Periode $\Lambda_x = 550$ nm bei verschiedenen Wellenlängen.



Abb. 5.12: Messprinzip für die Charakterisierung von OLEDs mit eindimensionalen Gittern. Der Azimutwinkel wurde dabei zu $\varphi = 0^{\circ}$ gewählt, so dass die betrachtete Einfallsebene den reziproken Gittervektor $\vec{G} = G \cdot \vec{e}_x$ enthält. Über einen Polarisator vor der Lichtleitfaser kann zwischen TE- und TM-Polarisation unterschieden werden.



Abb. 5.13: (a) Emission des Referenzbauteils ohne Bragg-Gitter. (b) bis (h) Emission von OLEDs mit eindimensionalen Bragg-Gittern als Funktion der Wellenlänge λ_0 und des Polarwinkels θ (bei einem Azimutwinkel von $\varphi = 0^\circ$). Es wurden OLEDs mit Gitterperioden von 600 nm bis 300 nm untersucht.



Abb. 5.14: Auskoppelwinkel des Hauptmaximums als Funktion der Gitterkonstante Λ_x für die Emissionswellenlänge $\lambda_0 = 600$ nm. Die eingezeichnete Linie ist ein Fit der Funktion 5.1, welche die Bragg-Streuung von geführten Moden am Gitter beschreibt. Für den Fitparameter n_{eff} ergibt sich daraus $n_{\text{eff}} = 1,60$.

keln θ_A , die eine Dispersion $\theta_A(\lambda_0)$ aufweisen. Neben sehr stark hervortretenden Maxima sind auch schwächere Maxima bei anderen Winkeln vorhanden. Mit abnehmender Gitterkonstante bewegen sich die Maxima zudem zu kleineren Auskoppelwinkeln θ_A hin. Für das Emissionsmaximum der Bauteile bei $\lambda_0 = 600$ nm sind die Auskoppelwinkel θ_A als Funktion der Gitterkonstante Λ_x in Abbildung 5.14 aufgetragen. Diese Datenpunkte wurden mit der Funktion

$$\theta_A = \arcsin\left(n_{\rm eff} - \frac{\lambda_0}{\Lambda_x}\right) \tag{5.1}$$

und dem Fitparameter n_{eff} gefittet, wobei n_{eff} als Realteil des effektiven Brechungsindex einer geführten Mode zu verstehen ist. Gleichung 5.1 ergibt sich aus Gleichung 2.11. An der eingezeichneten Fit-Kurve in Abbildung 5.14 sieht man, dass sich für $n_{\text{eff}} = 1,60$ eine sehr gute Übereinstimmung mit den experimentellen Daten ergibt. Dies deutet darauf hin, dass die Maxima in der Emission der OLEDs mit strukturierten ITO-Anoden durch Bragg-Streuung und Auskopplung von geführten Moden entstehen.

Abbildung 5.15 zeigt die Emissionsspektren der gleichen Bauteile wie Abbildung 5.13, allerdings gemessen in einer Einfallsebene die senkrecht auf dem reziproken Gittervektor $\vec{G} = G \cdot \vec{e}_x$ steht. Der Azimutwinkel ist hier $\varphi = 90^\circ$. Auch in diesen Messungen sind Auskoppelmaxima zu sehen, allerdings unter wesentlich höheren Winkeln. Dass die Emission in der yz-Ebene auch



Abb. 5.15: Emission der selben Bauteile wie in Abbildung 5.13, allerdings gemessen in einer Einfallsebene (yz-Ebene), die senkrecht auf dem reziproken Gittervektor $\vec{G} = G \cdot \vec{e}_x$ steht. Der Azimutwinkel ist hier $\varphi = 90^\circ$. (a) Emission des Referenzbauteils ohne Bragg-Gitter. (b) bis (h) Bauteile mit eindimensionalen Gittern mit Perioden zwischen 600 nm und 300 nm.



Abb. 5.16: Schematische Darstellung der Auskopplung von geführten Moden in die yz-Ebene durch ein eindimensionales Gitter in x-Richtung. Durch Bragg-Streuung am Gitter verschwindet die x-Komponente des Wellenvektors und der gestreute Wellenvektor liegt in der yz-Ebene.

durch ein Bragg-Gitter in x-Richtung beeinflusst wird, ist wie folgt zu verstehen. Für $\varphi = 90^{\circ}$ ist der Auskoppelwinkel gegeben durch:

$$\sin \theta_A = \frac{k_y}{k_0}.$$
 (5.2)

Damit die Auskopplung in der yz-Ebene und damit senkrecht zum reziproken Gittervektor (dieser zeigt in x-Richtung) stattfindet, muss die Bragg-Streuung am Gitter zu einer verschwindenden x-Komponente des Wellenvektors führen:

$$k_x' = k_x - G_x = 0.$$

In Abbildung 5.16 ist dieser Fall graphisch veranschaulicht. Daraus folgt

$$k_x = G_x$$

und

$$k_y = \sqrt{\beta^2 - G_x^2}$$

Dies führt mit Gleichung 5.2 schließlich zu

$$\theta_A = \arcsin\left(\sqrt{n_{\rm eff}^2 - \left(\frac{\lambda_0}{\Lambda_x}\right)^2}\right),$$
(5.3)

wobei $G_x = 2\pi/\Lambda_x$ und $n_{\text{eff}} = \beta/k_0$ benutzt wurde. Für eine Wellenlänge von $\lambda_0 = 600$ nm und eine Gitterperiode von $\Lambda_x = 400$ nm führt dies beispielsweise zu einem Auskoppelwinkel von $\theta_A = 33,8^\circ$ in der yz-Ebene mit $\varphi = 90^\circ$.

Auch OLEDs mit zweidimensionalen Gittern wurden auf die oben beschriebene Art vermessen. In Abbildung 5.17 sind die Emissionen von OLEDs mit zweidimensionalen Bragg-Gittern als Funktion der Wellenlänge λ_0 und des Winkels θ dargestellt. Die Gitterkonstanten reichen dabei wiederum von $\Lambda_x = 600$ nm bis $\Lambda_x = 300$ nm. Der Azimutwinkel beträgt jeweils $\varphi = 0^\circ$. Aufgrund der Rotationssymmetrie der hergestellten zweidimensionalen Gitter führen Messungen mit $\varphi = 0^{\circ}$ und $\varphi = 90^{\circ}$ bei diesen Bauteilen zum gleichen Ergebnis. In den Messungen sind sowohl die Maxima durch Modenauskopplung nach Gleichung 5.1 als auch die Maxima durch Modenauskopplung nach Gleichung 5.3 vorhanden. Insbesondere bei dem Bauteil mit einer Gitterkonstante von $\Lambda_x = 400$ nm ist dies deutlich zu erkennen. Allgemein treten die Maxima durch Modenauskopplung bei den OLEDs mit zweidimensionalen Bragg-Gittern in der ITO-Schicht jedoch nicht so deutlich hervor wie bei den OLEDs mit eindimensionalen Gittern. Die Gittertiefe war bei ein- und zweidimensionalen Gittern in derselben Größenordnung und kann hier nicht als Grund für die wesentlich schwächer ausgeprägten Maxima angeführt werden. Die schwächere Auskopplung lässt sich jedoch dadurch verstehen, dass die zusätzliche Strukturierung in y-Richtung die Wirkung des Gitters in x-Richtung abschwächt, indem dieses "durchbrochen" wird. Die Gittereffizienz ist insbesondere deshalb relevant, weil die Modenauskopplung mit der Absorption der Mode konkurriert (siehe hierzu auch Kapitel 8). Zudem ergibt sich aus dem Herstellungsverfahren der zweidimensionalen Gitter über LIL, dass das Tastverhältnis⁴ der Modulation in x-Richtung innerhalb einer Periode in y-Richtung stark variiert (siehe Abbildung 5.5(b)). Dadurch weicht die Gitterform recht stark vom optimalen Tastverhältnis von T = 0.5 ab, was sich zusätzlich negativ auf die Gittereffizienz auswirkt [182].

Um die ausgekoppelten Moden näher zu klassifizieren, wurden Messungen mit einem Polarisationsfilter vor dem Lichtwellenleiter durchgeführt (siehe Abbildung 5.12). Auf diese Weise kann zwischen TE- und TM-polarisierter Emission unterschieden werden. In Abbildung 5.18(a) und (b) sind Messungen der TE- und TM-Emission einer OLED mit einem eindimensionalen Bragg-Gitter mit Periode $\Lambda_x = 550$ nm dargestellt. Der Azimutwinkel beträgt $\varphi = 0^{\circ}$. Deutlich zu sehen sind die Auskoppelmaxima in der TE-Emission. Hier scheinen sich zwei Maxima bzw. ausgekoppelte Moden zu kreuzen (siehe Abschnitt 5.3). In der TM-Emission treten dagegen deutlich schwächere Maxima auf. Abbildung 5.18(c) zeigt die Emission des Bauteils bei der Wellenlänge $\lambda_0 = 600$ nm als Funktion des Polarwinkels θ . Bei $\theta = 31,75^{\circ}$ sieht man eine deutliche Erhöhung der TE-Emission. In der TM-Emission sind dagegen nur sehr schwache Maxima zu erkennen. Für die Darstellungen in den Abbildungen 5.18(c) und (d) wurden die Messungen beider Polarisationen bei $\theta = 0^{\circ}$ und $\lambda_0 = 600$ nm auf 1 normiert, da das Bauteil während der beiden Messungen degradiert ist, wie auch an dem leichten Intensitätsabfall von links nach rechts zu erkennen ist. Generell erschwerte die Degradation den Vergleich verschiedener Bauteile und Messungen erheblich. In Abbildung 5.18(d) ist das Spek-

⁴Das Tastverhältnis T ist das Verhältnis aus der Stegbreite B eines Gitters und dessen Gitterperiode A: $T = B/\Lambda$.



Abb. 5.17: Emission von OLEDs mit zweidimensionalen Bragg-Gittern als Funktion der Wellenlänge λ_0 und des Winkels θ . Die Gitterkonstanten reichen dabei von $\Lambda_x = 600$ nm bis $\Lambda_x = 300$ nm. Der Azimutwinkel beträgt jeweils $\varphi = 0^\circ$. Aufgrund der Rotationssymmetrie der hergestellten zweidimensionalen Gitter führen Messungen mit $\varphi = 0^\circ$ und $\varphi = 90^\circ$ bei diesen Bauteilen zum gleichen Ergebnis.



Abb. 5.18: (a) und (b) TE- und TM-Emission einer OLED mit einem eindimensionalen Bragg-Gitter mit Periode $\Lambda_x = 550$ nm. Der Azimutwinkel beträgt $\varphi = 0^\circ$. (c) Vergleich der TE- und TM-Emission des Bauteils bei der Wellenlänge $\lambda_0 = 600$ nm als Funktion des Polarwinkels θ . Bei $\theta = 31,75^\circ$ sieht man eine deutliche Erhöhung der TE-Emission. (d) Spektrum des Bauteils bei $\theta = 31,75^\circ$ in TE- und TM-Polarisation aufgespalten. Da es während der Messungen zu einer Degradation des Bauteils kam, wurden die Messergebnisse in (c) und (d) für beide Polarisationen bei $\theta = 0^\circ$ und $\lambda_0 = 600$ nm auf 1 normiert.



Abb. 5.19: (a) und (b) TE- und TM-Emission einer OLED mit einem Bragg-Gitter mit Periode $\Lambda_x = 400$ nm. Der Azimutwinkel beträgt $\varphi = 0^{\circ}$. (c) Vergleich der TE- und TM-Emission des Bauteils bei der Wellenlänge $\lambda_0 = 600$ nm als Funktion des Polarwinkels θ . (d) Spektrum des Bauteils bei $\theta = 6,5^{\circ}$ in TE- und TM-Polarisation aufgespalten.

trum des Bauteils bei $\theta = 31,75^{\circ}$ dargestellt. Auch hier sieht man die deutliche Erhöhung der TE-Emission. Abbildung 5.19 zeigt zum Vergleich nochmals die Emission einer OLED mit einem Bragg-Gitter mit Periode $\Lambda_x = 400$ nm. Die Auskoppelmaxima sind hier etwas schmaler und überdecken einen geringeren Winkelbereich. Das Maximum der Emission liegt hier bei ca. $\lambda_0 = 620$ nm. Die vergleichsweise breiten Auskoppelmaxima der OLED mit dem ITO-Gitter der Periode $\Lambda_x = 550$ nm sind darauf zurück zu führen, dass sich bei einer Wellenlänge von 600 nm zwei Auskoppelmaxima überlagern, wie oben bereits erwähnt. Um dies näher zu ergründen und die Auskoppelmaxima bestimmten geführten Moden und Streuordnungen zuordnen zu können, werden im Folgenden T-Matrix-Simulationen herangezogen.

5.3 T-Matrix-Simulationen

Im Folgenden sollen die gemessenen Auskoppelmaxima bestimmten geführten Moden in den OLEDs zugeordnet werden. Dabei wird die T-Matrix-Methode verwendet, um die Dispersi-



Abb. 5.20: Mit der T-Matrix-Methode erstellte Übersichtskarte der Funktion $|E_{f,0}(n_{\text{eff}})|$ für den TE-Fall (a) und den TM-Fall (b) bei einer Wellenlänge von $\lambda_0 = 600$ nm. Zugrunde gelegt wurde die Struktur der verwendeten Aufdampf-OLEDs. Die Minima hängen mit exponentiell abfallenden Felder außerhalb der OLED-Struktur zusammen und weisen somit auf geführte Moden hin.

onsrelationen $\omega(k_x)$ bzw. $\lambda_0(k_x)$ der auftretenden Moden in den Bauteilen zu ermitteln. Die Strukturierung der ITO-Anode wird dabei durch eine reduzierte ITO-Schichtdicke berücksichtigt. Der Dispersion der verwendeten Materialien wird über komplexe Brechungsindizes $n(\lambda_0)$ Rechnung getragen. Für jede Wellenlänge λ_0 können somit die effektiven Brechungsindizes $n_{\rm eff}(\lambda_0)^5$ der geführten Moden in der Struktur ermittelt werden. Wie in Abschnitt 4.1.2.1 beschrieben, wird dazu für eine bestimmte Wellenlänge zunächst eine Übersichtskarte der Funktion $|E_{f,0}(n_{\text{eff}})|$ erstellt. Die Minima dieser Funktion hängen mit exponentiell abfallenden Feldern außerhalb der OLED-Struktur zusammen und weisen somit auf geführte Moden hin. Im Abbildung 5.20 ist dies für die verwendeten Aufdampf-OLEDs exemplarisch bei einer Wellenlänge von $\lambda_0 = 600$ nm dargestellt. Im TE-Fall erhält man ein Minimum bei $n_{\text{eff}} = 1, 6 + 0,0044i$. Es handelt sich hierbei um eine TE₀-Mode. Das Modenprofil⁶ I(z) ist in Abbildung 5.21(a) dargestellt. Für den TM-Fall sind in Abbildung 5.20(b) zwei Minima zu erkennen. Für $n_{\text{eff}} =$ 2, 1+0, 38i ergibt sich eine SPP-Mode. Das charakteristische SPP-Modenprofil ist in Abbildung 5.21(b) zu sehen. Das zweite Minimum in Abbildung 5.20(b) weist auf eine TM_0 -Mode mit einem effektiven Brechungsindex von $n_{\text{eff}} = 1,52+0,0031i$ hin. Dies wird durch das Modenprofil in Abbildung 5.21(c) bestätigt. Das Minimum dieser Mode im Bereich um $z = 0, 15 \,\mu$ m ist keine Nullstelle. In Tabelle 5.1 sind die effektiven Brechungsindizes der drei Moden sowie weitere Modenkennzahlen, auf die weiter unten eingegangen wird, exemplarisch für $\lambda_0 = 600$ nm aufgeführt. Abbildung 5.21(d) zeigt die Dispersionsrelation der drei Moden. Man erkennt, dass sich unterhalb einer gewissen Frequenz bzw. oberhalb von ca. $\lambda_0 = 660 \,\text{nm}$ keine TM₀-Mode mehr

⁵Hier sei nochmals darauf hingewiesen, dass n_{eff} eine Modenkennzahl und kein "mittlerer Brechungsindex" einer Mode ist. Vergleiche hierzu Gleichung 2.6 und die daran anschließenden Ausführungen.

⁶Modenprofil = Intensitätsverteilung der Mode im Bauteil.



Abb. 5.21: Modenprofile (Intensitätsverteilungen) I(z) der drei gebundenen Moden in der hier betrachteten OLED-Struktur bei der Wellenlänge $\lambda_0 = 600$ nm: (a) TE₀-Mode, (b) SPP-Mode, (c) TM₀-Mode. (d) Dispersionsrelationen $\omega(k_x)$ der drei Moden mit den Lichtlinien für Luft, Glas und ITO.

ausbilden kann. Zur Identifikation der ausgekoppelten Moden mit den oben berechneten Moden wurde anhand der Gleichung 5.1 und mit $n_{\text{eff}} = k_x/k_0$ ein Auskoppelwinkel zu jeder Wellenlänge und Mode berechnet. In den Abbildungen 5.22 und 5.23 sind die berechneten Auskoppelwinkel für die verschiedenen Moden jeweils mit den Messdaten überlagert dargestellt. Rechts daneben sind jeweils die Dispersionsrelationen nach Anwendung der Bragg-Formel erster Ordnung zu sehen (siehe Gleichung 2.10). Es wird deutlich, dass durch Bragg-Streuung Licht aus geführten Moden in Bereiche oberhalb der Lichtlinie gestreut wird, was gleichbedeutend mit der Auskopplung des Lichtes ist. Die gestreute TE₀-Mode ist grün dargestellt. Dabei stellen die durchgezogenen Linien das Ergebnis von Streuprozessen erster Ordnung und die gestrichelten Linien das Ergebnis von Bragg-Streuung zweiter Ordnung dar. Die gestreute SPP-Mode ist rot dargestellt, die gestreute TM₀-Mode schwarz. Für beide gilt analog zur TE₀-Mode, dass die durchgezogenen Linien durch Bragg-Streuung erster Ordnung und die gestrichelten Linien durch Bragg-Streuung zweiter Ordnung entstehen. Der Vergleich von Messung und T-Matrix-Simulation zeigt, dass die Auskoppelmaxima von der TE₀-Mode herrühren. Dies ist konsistent



Abb. 5.22: Links: Berechneter Auskoppelwinkel der verschiedenen Moden, jeweils mit den Messdaten überlagert, für OLEDs mit Gitterperioden von 600 nm bis 450 nm. Rechts daneben: Dispersionsrelationen nach Anwendung der Bragg-Formel erster Ordnung (siehe Gleichung 2.10). Durch Bragg-Streuung wird Licht aus gebundenen Moden in Bereiche oberhalb der Lichtlinie gestreut, was gleichbedeutend mit der Auskopplung des Lichtes ist.



Abb. 5.23: Links: Berechneter Auskoppelwinkel der verschiedenen Moden, jeweils mit den Messdaten überlagert, für OLEDs mit Gitterperioden von 400 nm, 350 nm und 300 nm. Rechts daneben: Dispersionsrelationen nach Anwendung der Bragg-Formel erster Ordnung (siehe Gleichung 2.10). Durch Bragg-Streuung wird Licht aus gebundenen Moden in Bereiche oberhalb der Lichtlinie gestreut, was gleichbedeutend mit der Auskopplung des Lichtes ist.

	TE ₀	SPP	TM ₀
$\operatorname{Re}(n_{\mathrm{eff}})$	1,6	2,1	1,52
$\operatorname{Im}(n_{\mathrm{eff}})$	0,0044	0,38	0,0031
Absorptionslänge $(1/\alpha)/\mu m$	11	0,13	15
Füllfaktor im Bereich ITO-Organik-Gitter / %	18	5,3	0,8
Füllfaktor in Emitterschicht / %	4	12,6	0,05

Tab. 5.1: Effektive Brechungsindizes, Absorptionslängen, Füllfaktoren im Bereich des ITO-Gitters $(\pm 25 \text{ nm um die ITO-Organik-Grenzfläche})$ und Füllfaktoren in der Emitterschicht für die drei Moden im Bauteil bei einer Wellenlänge von $\lambda_0 = 600 \text{ nm}$. Die Füllfaktoren sind in Prozent der über die *z*-Richtung aufintegrierten Modenintensitäten angegeben. Die angegebene Absorptionslänge bezieht sich auf die Modenabsorption bei einer Ausbreitung der Moden parallel zu den Schichtgrenzen der OLED und wurde mittels Gleichung 2.7 berechnet.

mit der Messung der Polarisation der Auskoppelmaxima und der Ermittlung des effektiven Brechungsindex über einen Fit gemäß Abbildung 5.14 und Gleichung 5.1 zu $Re(n_{\text{eff}}) = 1,60$.

Die Auskopplung der TE₀-Mode lässt sich qualitativ über die jeweiligen Modenprofile und die Füllfaktoren der Moden in den verschiedenen Schichten verstehen. Voraussetzung für die Bragg-Streuung einer Mode am Gitter ist ein nichtverschwindender Überlapp der Mode mit der Gitterstruktur. Der Füllfaktor der Mode muss demnach im Bereich der ITO-Organik-Grenzschicht bzw. des Gitters möglichst hoch sein. In Tabelle 5.1 sind neben den effektiven Brechungsindizes auch die Füllfaktoren der Moden im Bereich des ITO-Organik-Gitters (± 25 nm um die ITO-Organik-Grenzfläche) und in der Emitterschicht angegeben. Zusätzlich sind die Absorptionslängen der Moden aufgeführt, die man über die Imaginärteile der effektiven Brechungsindizes erhält.

Die TE₀-Mode hat einen Füllfaktor von 4% in der Emitterschicht. Die Dipolmomente der Emitter haben durch den Aufdampfprozess keine Vorzugsrichtung und sind isotrop verteilt [100]. Dadurch ergibt sich aus der Goldenen Regel (Gleichung 2.9), dass ein gewisser Anteil des Lichts in die TE₀-Mode emittiert wird, was einen Verlustkanal für das Bauteil darstellt. Andererseits hat die TE₀-Mode mit 18% den größten Überlapp aller Moden mit dem Gitterbereich. Die Absorptionslänge von 11 μ m erlaubt eine Wechselwirkung mit dem Gitter über viele Gitterperioden hinweg, so dass es zur kohärenten Bragg-Streuung und Auskopplung der Mode kommen kann.

Verglichen mit der TE₀-Mode hat die SPP-Mode einen erheblich größeren Überlapp mit der Emitterzone. Sie stellt demnach einen erheblichen Verlustkanal für das Bauteil dar. Allerdings können diese Photonen im Gegensatz zum Licht in der TE₀-Mode nicht effizient über Bragg-Streuung ausgekoppelt werden. Der Füllfaktor im Gitter-Bereich um die ITO-Organik-Grenzschicht ist mit 5,3% relativ gering. Das Gitter drückt sich zwar bis zur Organik-Metall-Grenzschicht durch. Die Modulation ist dort jedoch wesentlich geringer. Zudem ist die Absorption



Abb. 5.24: Vergleich der Messungen der TE- und TM-Emission am Bauteil mit $\Lambda_x = 550$ nm mit den T-Matrix-Simulationen. Bei genauerer Betrachtung scheint sich für die Bragg-Streuung erster Ordnung der TM₀-Mode ein Einkoppeln in die Mode statt einer Auskopplung der Mode zu ergeben. Dies war mit den anderen Proben jedoch nicht reproduzierbar. In Kapitel 7 wird im Rahmen eines gesonderten Experiments näher auf Einkoppeleffekte eingegangen.

der SPP-Mode so hoch, dass die Absorptionslänge mit nur 130nm unterhalb einer Gitterperiode bleibt und eine effiziente Bragg-Streuung somit nicht möglich ist.

Die TM₀-Mode hat mit 15 μ m zwar die größte Absorptionslänge aller drei Moden aufzuweisen, allerdings ist der Füllfaktor in der Emitterschicht mit 0,05 % wesentlich geringer als bei den anderen beiden Moden. Zudem ist der Füllfaktor der Mode im Bereich des ITO-Organik-Gitters mit 0,8% ebenfalls sehr gering. Dies deckt sich qualitativ mit den experimentellen Befunden zur Polarisation der ausgekoppelten Moden in den Abbildungen 5.18 und 5.19. In diesen sind für die TM-Polarisation im Vergleich zur TE-Polarisation nur sehr schwache Peaks zu sehen. Abbildung 5.22(c) zeigt, dass diese Peaks der TM₀-Mode zuzuordnen sind. Bei genauerer Betrachtung scheint sich in Abbildung 5.24 für die Bragg-Streuung erster Ordnung der TM₀-Mode ein Einkoppeln in die Mode statt einer Auskopplung der Mode zu ergeben, da man Einbrüchen in den entsprechenden Bereichen sieht und keine Maxima. Deshalb ist in Abbildung 5.24 für die OLED mit Gitterperiode $\Lambda_x = 550$ nm ein Vergleich der Messergebnisse für TE- und TM-Polarisation mit der T-Matrix-Simulation dargestellt, der dies bestätigt. Derlei Einkoppeleffekte waren jedoch nicht mit anderen Bauteilen zu reproduzieren, was auf die oben bereits erwähnte Reproduzierbarkeit des Herstellungsprozesses der OLEDs zurückzuführen ist. Da es sich bei der Bragg-Streuung um einen kohärenten Streuprozess handelt, sind die damit verbundenen Resultate bzgl. der absoluten Intensität sehr sensibel auf Änderungen der Bauteile von Charge zu Charge. Dies gilt insbesondere für derart kleine Effekte, wie die Wechselwirkung der TM₀-Mode mit dem Gitter im obigen Fall. In Kapitel 7 wird im Rahmen eines gesonderten Experiments näher auf den Sachverhalt eingegangen, dass es durch das Einbringen von Bragg-Gittern auch zu Einkoppeleffekten statt zur Auskopplung von Moden kommen kann.



Abb. 5.25: Bildschirmfoto des OLED-Aufbaus, der für die Simulation benutzt wurde. Angelehnt an REM-Bilder von FIB-Schnitten durch die strukturierten OLEDs (siehe Abbildung 5.8) wurde ein trapezförmiges ITO-Gitter modelliert.

5.4 FDTD-Simulationen

Im vorangegangenen Abschnitt wird durch T-Matrix-Simulationen eine qualitative Erklärung der Wirkung der Bragg-Gitter auf verschiedene Moden gegeben. Die T-Matrix-Simulationen wurden für unstrukturierte OLEDs durchgeführt. Die Gitter wurden dabei durch eine reduzierte ITO-Schichtdicke berücksichtigt. Anhand der Füllfaktoren der Moden in den relevanten Schichten und durch Anwendung der Bragg-Formel 2.10 wurde der Einfluss des Gitters auf die Auskopplung qualitativ diskutiert.

Im Folgenden wird die FDTD-Methode benutzt, um eine Simulation von strukturierten OLEDs inklusive der Bragg-Gitter durchzuführen. In Abbildung 5.25 ist ein Bildschirmfoto des OLED-Aufbaus zu sehen, wie er in der FDTD-Simulation verwendet wurde. Angelehnt an REM-Bilder von FIB-Schnitten durch die strukturierten OLEDs (siehe Abbildung 5.8) wurde ein trapezförmiges ITO-Gitter modelliert. In der Simulation wurde diese Gitterform bis zur Kathode beibehalten, da eine Umsetzung der eher wellenartigen Struktur der oberen Schichten, insbesondere der Kathode, zu keinen zufriedenstellenden Ergebnissen führte. Wie in Abschnitt 4.2.2 beschrieben, wurde eine Limitierung auf zweidimensionale Simulationen vorgenommen. Bedingt durch die speziellen Anforderungen, die OLEDs mit Bragg-Gittern an das Simulationsmodell stellen, ist die Simulation in drei Dimensionen sehr zeitaufwändig und ermöglicht daher kaum Iterations- oder Optimierungsschleifen. Durch die Vielzahl von Materialien und möglichen Parametern sowie durch die Notwendigkeit zur inkohärenten Überlagerung verschiedener Dipolorientierungen und -positionen, ist dies jedoch zwingend erforderlich. Die Simulation in zwei Dimensionen ermöglicht die Betrachtung eindimensionaler Bragg-Gitter und deren Einfluss auf die Modenextraktion aus OLEDs, was im Folgenden beschrieben wird. Weitere Details zum Simulationsprozess sind in Abschnitt 4.2.2 beschrieben.

In Abbildung 5.26 sind zunächst die Ergebnisse einer FDTD-Simulation einer unstrukturierten OLED dargestellt. Abbildung 5.26(a) zeigt die Abstrahlung der OLED in das Glassubstrat aufgeteilt in TE- und TM-polarisiertes Licht sowie die Summe beider Polarisationen. Die leicht TE-polarisierte Abstrahlung für $\theta > 0$ findet man auch in den Messdaten unstrukturierter OLEDs. In Abbildung 5.26(b) ist die Abstrahlung der OLED in den Außenraum (Luft) dargestellt. Am Glas-Luft-Übergang wurde lediglich die Gleichung 4.11 angewandt, die das Brechungsgesetz und damit verbunden die Raumwinkeländerungen am Glas-Luft-Übergang beschreibt. Zum Vergleich ist auch ein lambertsches Abstrahlprofil dargestellt. Ein Vergleich mit der gemessenen Abstrahlcharakteristik ist in 5.26(c) dargestellt. In Abbildung 5.26(d) ist ein Vergleich der Messdaten mit den Simulationsergebnissen nach Anwendung von Gleichung 4.11 und den fresnelschen Formeln dargestellt. Man sieht, dass durch die Anwendung der fresnelschen Formeln die Lichtauskopplung aus dem Substrat für hohe Winkel leicht unterschätzt wird. Dies ist dadurch zu verstehen, dass der am Glas-Luft-Übergang zurückreflektierte Anteil des Lichts über eine Reflexion an der Kathode mehrfach die Möglichkeiten erhält das Bauteil zu verlassen. Bei der Variation der Emitterposition wurde die beste Übereinstimmung mit den experimentellen Daten für Emitter erreicht, die sich im oberen Bereich der Alq₃:DCM-Schicht an der Grenze zur Lochblockschicht befanden. Diese Emitterposition wurde für die weiteren Simulationen beibehalten.

In Abbildung 5.27 ist exemplarisch die FDTD-Simulation der Abstrahlung einer OLED mit einem Bragg-Gitter der Periode 500nm dargestellt. Die Ergebnisse sind dabei einerseits nach den drei verschiedenen Dipolorientierungen ($2 \times TM$, $1 \times TE$) und andererseits nach der lateralen Position der Emitterdipole bezüglich des Bragg-Gitters (oberhalb eines "Gittertals" oder oberhalb eines "Gitterberges") aufgeschlüsselt. Diese Aufschlüsselung erlaubt einige Schlussfolgerungen. Zunächst ist deutlich zu sehen, dass nur ein geringer Anteil des emittierten Lichts von Dipolen, die senkrecht zu den Schichtebenen des Bauteils stehen (Dipol-Typ TM_B), die OLED verlassen kann. Licht von in der Schicht liegenden Dipolen (Dipol-Typen TE und TM_A) koppelt wesentlich effizienter aus. Dies ist nicht weiter verwunderlich, stellt jedoch ggf. eine Stellschraube für weitere Bauteiloptimierungen dar.

Vergleicht man die Positionen 1 und 2 des Dipols TM_A so sieht man bei Position 1 Einbrüche und bei Position 2 Maxima in der Emission. Die laterale Position der Emitter im Bezug zum Gitter spielt demnach eine wichtige Rolle für die Wechselwirkung des Gitters mit den Emittern und den Moden. Nach Abschnitt 2.3.4 wird diese Abhängigkeit von der Umgebung des Emitters durch die lokale Feldstärke der verschiedenen Moden hervorgerufen. Vereinfacht betrachtet ist dies zumindest für den TM_A -Dipol dadurch zu verstehen, dass bei Position 1, dort wo ITO weggeätzt wurde ("Gittertäler"), aufgrund der geringeren Schichtdicke lokal keine TM_0 -Mode existiert. Ein Emitter in diese Position kann demnach nicht direkt in die TM_0 -Mode emittieren. Durch eine Wechselwirkung des direkt abgestrahlten Lichtes mit dem Gitter kann es allerdings zu einer Einkopplung in die Mode kommen, was sich als fehlendes Licht in der Abstrahlung be-



Abb. 5.26: (a) FDTD Simulation der Abstrahlung $I(\theta_{\text{Glas}})$ einer unstrukturierten OLED in das Glassubstrat bei $\lambda_0 = 600 \text{ nm}$ (aufgeteilt in TE- und TM-Polarisation und deren Summe). (b) Abstrahlung $I(\theta_{\text{ext}})$ einer unstrukturierten OLED aus dem Glassubstrat heraus in den Außenraum. Am Glas-Luft-Übergang wurde lediglich Gleichung 4.11 angewandt. Zum Vergleich ist ein lambertsches Abstrahlprofil dargestellt. (c) Vergleich der gemessenen Abstrahlcharakteristik mit dem Simulationsergebnis. (d) Vergleich der Messdaten mit den Simulationsergebnissen nach Anwendung von Gleichung 4.11 und den fresnelschen Formeln. Für große Winkel wird bei Anwendung der fresnelschen Formeln die Auskopplung leicht unterschätzt. (Alle Abstrahlprofile wurden in Vorwärtsrichtung jeweils auf $I(\varphi = 0^\circ, \theta = 0^\circ) = 1$ normiert.)



Abb. 5.27: FDTD-Simulation der Abstrahlung einer OLED mit einem Bragg-Gitter der Periode $\Lambda = 500 \text{ nm}$ bei der Wellenlänge $\lambda_0 = 600 \text{ nm}$ in den Außenraum. Die Darstellung ist aufgeschlüsselt nach der Orientierung der Dipolmomente (Polarisation) der Emitter und der Position der Emitter-Dipole relativ zum Gitter. Die Abstrahlprofile wurden so normiert, dass die Gesamtstrahlungsintensität (Abbildung rechts unten) in Vorwärtsrichtung $I(\varphi = 0^\circ, \theta = 0^\circ) = 1$ ergibt.

merkbar macht. Der Emitter TM_A in Position 2 (oberhalb eines "Gitterberges") kann direkt in die TM_1 -Mode emittieren. Dieses Licht kann dann über das Gitter wieder ausgekoppelt werden und macht sich als Maximum in der Abstrahlcharakteristik bemerkbar. Ein ähnlicher Fall, allerdings hervorgerufen durch einen unterschiedlichen vertikalen Aufbau verschiedener OLEDs, wird in Kapitel 7 diskutiert.

Neben Maxima und Einbrüchen sind auch asymmetrische Resonanzen in den Simulationsergebnissen zu sehen. Insbesondere die Abstrahlung des TE-Dipols in Position 2 zeigt diese. Sie sind sowohl für den Bragg-Streuprozess erster Ordnung bei ca. $\theta = 23,5^{\circ}$ als auch für den Streuprozess zweiter Ordnung bei einem Winkel von etwas $\theta = 53^{\circ}$ zu erkennen. Diese sogenannten Fano-Resonanzen [183, 184] treten bei der Kopplung diskreter Zustände an ein Kontinuum auf [185], wenn es sowohl einen direkten Zerfallskanal zum Kontinuum als auch einen resonanten Übergang über einen Zwischenzustand in das Kontinuum gibt. Ihre Ausprägung bzw. Form hängt vom Verhältnis der resonanten zur nicht-resonanten Kopplung des Zustands an das Kontinuum ab und kann als Interferenz dieser beiden Kanäle verstanden werden. Bei metallischen Bragg-Gittern sind Fano-Resonanzen als Woods-Anomalien in den Reflexionsspektren bekannt [186, 187]. Sie sind auf diskrete SPP-Zustände zurückzuführen, die über das Gitter angeregt werden können. Durch diese kommt es zu Interferenzeffekten mit dem direkt am Gitter gestreuten Licht [187-189]. Analog dazu deuten die Fano-Resonanzen in den Simulationen der OLED-Emission auf Interferenzen zwischen der direkten Emission von Licht und der Emission über den Zwischenzustand einer geführten Mode hin. Eine detaillierte Untersuchung dieser Phänomene wird im Rahmen dieser Arbeit nicht vorgenommen, da ausgeprägte asymmetrische Fano-Resonanzen in den Messdaten nicht zu erkennen waren. Einerseits lässt sich dies darauf zurückführen, dass lediglich zwei diskrete horizontale Emitterpositionen und eine vertikale Emitterposition berücksichtigt wurden. Bei einer Simulation und Überlagerung einer Vielzahl von Zwischenpositionen wäre mit einer Auswaschung der Resonanzen zu rechnen. Zudem kommt es in realen Bauteilen zu einer weiteren Auswaschung der Resonanzen durch Inhomogenitäten innerhalb der OLEDs. Dies wäre quasi eine inhomogene Verbreiterung der Resonanzen im Vergleich zur Simulation.

Betrachtet man sich die Wirkung des Gitter auf die gesamte TE- und TM-Abstrahlung in den Abbildungen 5.27, so bestätigen die FDTD-Simulationen die Messungen (siehe insbesondere Abb. 5.18) und die qualitativen Vorhersagen der Modenanalyse mit Hilfe der T-Matrix. In der TM-Polarisation sind keine signifikanten Beiträge durch Modenauskopplung festzustellen. Es sind lediglich schwache Maxima durch die Auskopplung der TM₀-Mode vorhanden. Die SPP-Mode ist in den Simulationsergebnissen nicht zu sehen. Einzig die TE₀-Mode wechselwirkt hinreichend stark mit dem Gitter, um einen signifikanten Beitrag zur Abstrahlcharakteristik zu leisten. Zum Vergleich ist in Abbildung 5.27 (ganz rechts unten) auch ein lambertsches Abstrahlprofil eingezeichnet.

Abbildung 5.28 zeigt die FDTD-Simulation der TE- und TM-Abstrahlung einer OLED mit



Abb. 5.28: FDTD-Simulation der TE- und TM-Abstrahlung einer OLED mit einem Bragg-Gitter der Periode $\Lambda = 550$ nm bei $\lambda_0 = 600$ nm. Der Vergleich mit den Messergebnissen in der Abbildung 5.18 zeigt eine sehr gute Übereinstimmung der Dispersion und der Polarisation der ausgekoppelten Moden. Die Simulation bestätigt, dass das Hauptmaximum auf Bragg-Streuung erster Ordnung der TE₀-Mode zurückzuführen ist.

einem Bragg-Gitter der Periode $\Lambda_x = 550$ nm als Funktion der Wellenlänge λ_0 und des Winkels θ . Der Vergleich mit den Messergebnissen in der Abbildung 5.18 zeigt eine sehr gute Übereinstimmung der Dispersion und der Polarisation der ausgekoppelten Moden. Die Simulation bestätigt auch, dass die Wirkung des Gitters auf die TE-Mode wesentlich stärker ist als die Wirkung des Gitters auf die TM-Moden. Das Hauptmaximum ist auf Bragg-Streuung erster Ordnung der TE₀-Mode zurückzuführen. Weiterhin ist für die Bragg-Streuung zweiter Ordnung im Gegensatz zum experimentellen Befund eine fano-ähnliche Resonanz bzw. ein Minimum in der Abstrahlung zu erkennen (siehe hierzu obige Ausführungen). Für die TM₀-Mode sind wie im Experiment nur schwache Auskoppelmaxima zu erkennen, deren Lage bzw. Dispersion sich mit den experimentellen Ergebnissen sehr gut decken.

In Abbildung 5.29 sind die simulierten Abstrahlprofile von OLEDs mit Gitterperioden von $\Lambda_x = 300 \text{ nm}$ bis $\Lambda_x = 600 \text{ nm}$ als Funktionen der Wellenlänge und des Winkels θ dargestellt. Die Abstrahlprofile wurden dabei jeweils für die xz-Ebene gerechnet, für die $\varphi = 0^\circ$ gilt. Wie oben für OLEDs mit Gittern der Perioden $\Lambda_x = 500 \text{ nm}$ und $\Lambda_x = 550 \text{ nm}$ schon exemplarisch gezeigt und analysiert, dominiert für alle Gitterperioden die Auskopplung der TE₀-Mode die Abstrahlcharakteristiken. Ein Vergleich der gemessenen Auskoppelwinkel mit der FDTD-Simulation ist für eine Wellenlänge $\lambda_0 = 600 \text{ nm}$ in Abbildung 5.30 dargestellt. Die relative Nähe der rot eingezeichneten Datenpunkte zur Winkelhalbierenden zeigt, dass Simulation und Messung sehr gut übereinstimmen.



Abb. 5.29: FDTD-Simulation der Abstrahlung von OLEDs mit Gitterperioden zwischen $\Lambda_x = 300 \text{ nm}$ und $\Lambda_x = 600 \text{ nm}$.



Abb. 5.30: Vergleich der gemessenen Auskoppelwinkel der TE₀-Mode mit dem Ergebnis der FDTD-Simulation. Die relative Nähe der rot eingezeichneten Datenpunkte zur Winkelhalbierenden zeigt, dass Simulation und Messung sehr gut übereinstimmen.

5.5 Gittertiefe und Bauteileffizienz

5.5.1 Variation der Gittertiefe

Das spektrale Emissionsmaximum der unstrukturierten OLEDs liegt bei ca. $\lambda_0 = 600$ nm. Um für diese Wellenlänge eine Auskopplung der TE₀-Mode in Vorwärtsrichtung $\theta = 0^{\circ}$ zu erreichen, ist nach Abbildung 5.14 eine Gitterperiode von etwa $\Lambda_x = 375$ nm erforderlich. Für OLEDs mit dieser Gitterperiode und verschiedenen Gittertiefen ist in Abbildung 5.31 die Bauteilemission als Funktion des Winkels θ bei $\lambda_0 = 600$ nm dargestellt. In Abbildung 5.31(a) ist die Emission einer unstrukturierten Referenz-OLED sowie die Emission einer OLED mit einem 40nm tiefen Gitter zu sehen. Die Abbildungen 5.31(b) bis (d) zeigen die Emission von Bauteilen mit Gittertiefen von 49nm, 77nm und 83nm, die jeweils bei der gleichen Stromdichte von 2 mA/cm² betrieben wurden. Mit zunehmender Gittertiefe werden die Auskoppelmaxima relativ zur Gesamtemission zwar ausgeprägter, allerdings nimmt die Gesamtemission über alle Winkel betrachtet im Vergleich zur unstrukturierten OLED mit zunehmender Gittertiefe deutlich ab. Um die Ursache dieser Abnahme zu klären, wurden FDTD-Simulationen für verschiedene Gittertiefen durchgeführt. In Abbildung 5.32 sind die Ergebnisse für $\lambda_0 = 600$ nm als Funktion des Winkels θ dargestellt. Analog zu den Messergebnissen wird auch hier das Auskoppelmaximum mit zunehmender Gittertiefe höher. Ab 80nm ist auch eine Aufspaltung der Maxima wie im Experiment zu erkennen. Die Aufspaltung ergibt sich aus den verringerten Schichtdicken bei tiefen Gittern, wodurch sich die Dispersionsrelation der TE₀-Mode leicht verschiebt. Eine Abnahme der Gesamtabstrahlung wie in den Messergebnissen ist jedoch nicht zu verzeichnen. Diese Ab-



Abb. 5.31: Variation der Gittertiefe *d* bei OLEDs mit einer Gitterperiode von $\Lambda_x = 375$ nm. Dargestellt ist die Bauteilemission als Funktion des Winkels θ bei $\lambda_0 = 600$ nm. (a) Emission einer unstrukturierten Referenz-OLED sowie die Emission einer OLED mit einem 40 nm tiefen Gitter. (b) bis (d) Emission von Bauteilen mit Gittertiefen von 49 nm, 77 nm und 83 nm. Alle OLEDs wurden bei der gleichen Stromdichte von 2 mA/cm² betrieben. Mit zunehmender Gittertiefe werden die Auskoppelmaxima relativ zur Gesamtemission zwar ausgeprägter, allerdings nimmt die Gesamtemission über alle Winkel betrachtet im Vergleich zur unstrukturierten OLED mit zunehmender Gittertiefe deutlich ab.

nahme muss daher durch Änderung der elektrischen Bauteileigenschaften bedingt sein, die bei der FDTD-Simulation nicht betrachtet wurden.

5.5.2 Betrachtung der Gesamteffizienz

Um die Gesamteffizienz von OLEDs mit Bragg-Gittern bewerten zu können, mussten OLEDs mit Gittern mit Referenzproben aus der selben Aufdampf-Charge verglichen werden. Diese Notwendigkeit ergab sich aus der leicht schwankenden Qualität der hergestellten OLEDs von einer Charge zur nächsten. In den Abbildungen 5.33(a) bis (c) ist ein Vergleich von drei OLEDs mit 50 nm tiefen eindimensionalen Bragg-Gittern mit Referenzproben aus der selben Aufdampf-Charge dargestellt. Die Messung der Strahlungsleistung erfolgte dabei in einer Ulbricht-Kugel (siehe Abschnitt 3.3.1). Abbildung 5.33(a) zeigt, dass sich durch die Strukturierung die Betriebsspannung der OLEDs im Vergleich zu den unstrukturierten Proben deutlich reduziert. Dies lässt sich durch eine veränderte Feldverteilung bzw. einen verringerten Abstand der Elektroden in den strukturierten Bauteilen erklären [190]. Allerdings gehen mit der Strukturierung auch negative Effekte einher, wie die Abbildungen 5.33(b) und (c) zeigen. Verglichen mit den Referenzbauteilen kann keine Erhöhung der OLED-Effizienz der Bauteile mit Gittern festgestellt werden (siehe Abbildung 5.33(b)). Dies liegt daran, dass das Verhältnis von emittierter Strahlungsleistung zu injizierten Ladungsträgern für die OLEDs mit Bragg-Gittern sogar wesentlich ungünstiger ist als bei den Referenzbauteilen, wie Abbildung 5.33(c) verdeutlicht. Da optische Effekte durch die FDTD-Simulation ausgeschlossen werden können, deuten die Daten auf eine Abnahme der internen Quanteneffizienz durch die Strukturierung hin. Durch diese können die verschiedenen OLED-Schichten, deren ursprüngliche Dicke für eine unstrukturierte OLED ausgelegt ist, ihre Funktion nicht mehr effizient erfüllen. Die Gesamteffizienz, die das Verhältnis der emittierten Strahlungsleistung und der dazu aufgewandten elektrischen Leistung ist, wird durch die Bragg-Gitter somit nicht erhöht. Abbildung 5.34 zeigt die gleiche Analyse für eine andere Charge, in der OLEDs mit zweidimensionalen Bragg-Gittern mit Referenzproben verglichen wurden. Die Ergebnisse decken sich mit den Untersuchungen der ersten Charge an eindimensionalen Bragg-Gittern.

5.6 Zusammenfassung und Diskussion

In diesem Kapitel wurden OLEDs aus kleinen Molekülen mit Bragg-Gittern in der ITO-Anode untersucht. Durch die Gitterstrukturen kommt es zur Auskopplung geführter Moden aus den Bauteilen. Eingehende Untersuchungen dazu wurden sowohl experimentell als auch im Abgleich mit Simulationen durchgeführt.

Zur Herstellung der Gitter wurde Laserinterferenzlithographie (LIL) und physikalisches Plasmaätzen eingesetzt. Beide Verfahren haben das Potential auch in industriellen Maßstäben ein-



Abb. 5.32: Simulation zur Variation der Gittertiefe: (a) - (h) Abstrahlung von OLEDs mit Gittertiefen von 30 nm bis 100 nm bei einer Wellenlänge von $\lambda_0 = 600$ nm.



Abb. 5.33: Vergleich von OLEDs mit eindimensionalen Bragg-Gittern mit unstrukturierten OELDs der gleichen Aufdampf-Charge. (a) Strom-Spannungskennlinien. (b) Gesamteffizienz der Bauteile, die das Verhältnis der emittierten Strahlungsleistung und der dazu aufgewandten elektrischen Leistung ist. (c) Strahlungsleistung über Stromdichte als Maß für die Quanteneffizienz.

gesetzt zu werden. Durch eine Analyse von Resonanzen geführter Moden in den hergestellten ITO-Gitterstrukturen konnte gezeigt werden, dass die Gitterperiodizität über makroskopische Längenskalen hinweg sehr stabil bleibt (untersucht wurden 5 mm). Es konnten sowohl ein- als auch zweidimensionale Gitter hergestellt werden. Im Rahmen der hier diskutierten Experimente wurden Gitterperioden zwischen $\Lambda_x = 600$ nm und $\Lambda_x = 300$ nm realisiert. Die Gitterstrukturen lassen sich mit den gewählten Herstellungsverfahren somit recht einfach an bestimmte OLED-Typen anpassen. Bei der Wahl der Periode sind insbesondere die effektiven Brechungsindizes der geführten Moden zu berücksichtigen. So ergab sich beispielsweise bei der Peak-Wellenlänge der verwendeten OLEDs von $\lambda_0 = 600$ nm eine Auskopplung in Vorwärtsrichtung für eine Gitterperiode von $\Lambda_x = 375$ nm.

Mit einem eigens dafür aufgebauten Goniometer wurde die Emission der hergestellten OLEDs aus kleinen Molekülen als Funktion des Abstrahlwinkels und der Wellenlänge vermessen. Über einen Vergleich der Messungen mit T-Matrix-Simulationen lassen sich die Auskoppel-Maxima TE₀-Moden in den OLEDs zuordnen. Darüber hinaus gibt es in den Bauteilen eine TM₀-Mode



 Abb. 5.34: Vergleich von OLEDs mit zweidimensionalen Bragg-Gittern mit unstrukturierten OELDs der gleichen Aufdampf-Charge. (a) Strom-Spannungskennlinien. (b) Gesamteffizienz der Bauteile, die das Verhältnis der emittierten Strahlungsleistung und der aufgewandten elektrischen Leistung ist. (c) Strahlungsleistung über Stromdichte als Maß für die Quanteneffizienz.

und eine SPP-Mode. Eine Analyse der Modenprofile, Füllfaktoren und Absorptionslängen erlaubt eine qualitative Erklärung der Wirkung der Bragg-Gitter auf die jeweilige geführte Mode. Beim Vergleich von ein- und zweidimensionalen OLEDs zeigt sich, dass die Auskoppelmaxima von OLEDs mit zweidimensionalen Gittern bei vergleichbaren Gittertiefen schwächer sind als bei Bauteilen mit eindimensionalen Gittern. Dies lässt sich dadurch erklären, dass die zusätzliche Strukturierung in y-Richtung die Wirkung des Gitters in x-Richtung abschwächt und die Auskopplung mit der Modenabsorption konkurriert. Zudem war das Tastverhältnis der Gitter in x-Richtung herstellungsbedingt über eine Periode in y-Richtung stark veränderlich und vom Optimum T = 0,5 verschieden.

Mit Hilfe der FDTD-Methode wurden zweidimensionale Simulationen von Emittern in OLEDs mit eindimensionalen Bragg-Gittern durchgeführt. Dadurch konnte der Einfluss der Emitterposition relativ zum Gitter sowie die Ausrichtung der Emitter untersucht werden. Die inkohärente Überlagerung der Simulationsergebnisse von 6 Dipolen (3 Ausrichtungen an jeweils 2 Positionen) ergab schließlich die Bauteilemission. Bezüglich Auskoppelwinkel, Polarität und Dispersion decken sich die Ergebnisse sehr gut mit den experimentellen Befunden. In den Simulationen sind jedoch auch Einkoppeleffekte und Fano-Resonanzen zu erkennen, die experimentell nur sehr schwach und nicht reproduzierbar auftraten. Dies könnte an einer gewissen Auswaschung der Resonanzen (inhomogene Verbreiterung) durch Inhomogenitäten in den OLEDs liegen. Zudem wurden lediglich zwei diskrete horizontale Emitterpositionen und eine vertikale Emitterposition in den Simulationen berücksichtigt. Durch eine kontinuierlichere Verteilung der Zwischenpositionen wäre mit einer Auswaschung der Resonanzen zu rechnen. Insbesondere Einkoppeleffekte werden in Kapitel 7 noch eingehender untersucht.

In einer weiteren Versuchsreihe wurden OLEDs mit verschiedenen Gittertiefen hergestellt. Während die Auskoppelmaxima mit zunehmender Gittertiefe stärker hervortraten, kam es allerdings auch zu einer Abnahme der Gesamtemission. Letzteres war mit FDTD-Simulationen nicht zu reproduzieren und deutet somit auf einen elektrischen Effekt im Bauteil hin. Die Untersuchung der Gesamteffizienz der Bauteile in einer Ulbrichtkugel zeigte zudem, dass die Gesamteffizienz der OLEDs mit Gitterstrukturen trotz Auskopplung von Moden und einer steileren I-V-Kennlinie geringer ist als bei Referenzbauteilen. Diese Abnahme der Effizienz lässt sich auf eine geringere Quanteneffizienz zurückführen. Die Gitterstruktur ändert die effektive Dicke der Schichten in den OLEDs sowie die Feldverteilung, wodurch es zu einer inhomogenen Injektion kommt und die einzelnen OLED-Schichten ihre Funktion nicht mehr so effizient erfüllen können wie im unstrukturierten Bauteil.

Für eine effiziente Auskopplung der Wellenleitermoden ist eine effiziente Streuung der Moden am Gitter notwendig. Im obigen Experiment waren deshalb möglichst tiefe Gitter an Orten erforderlich, an denen die Modenintensität hoch ist. Dies ist insbesondere deshalb notwendig, weil die Auskopplung der Moden mit deren Absorption konkurriert. Andererseits kann das Einbringen von Gittern in den OLEDs die interne Quanteneffizienz herabsetzen. Für zukünftige Arbeiten sollten deshalb die Schichtdicken der OLED direkt auf das strukturierte Bauteil angepasst werden. Eine Alternative zu tiefen Gittern stellen Gitter mit einem möglichst hohen Unterschied der Brechungsindizes dar, wodurch die Gittereffizienz ebenfalls gesteigert würde. Diese Gitter dürfen jedoch nicht die elektronischen Eigenschaften des Bauteils negativ beeinflussen. Ein weiterer Ansatz zur Verringerung der Absorptionsverluste und Erhöhung der Auskopplung bestünde darin, durch ein geeignetes Microcavity-Design die Modenabsorption gering zu halten, so dass auch flache Gitter ihre Wirkung besser entfalten können. Neben diesen Techniken zur Auskopplung der Moden kann die Gesamteffizienz auch direkt durch die Emitter selbst beeinflusst werden. Die FDTD-Simulationen zeigen, dass die Ausrichtung und Position der Emitter einen erheblichen Einfluss auf die direkt emittierte Strahlungsleistung hat.
6 Metallische Bragg-Gitter für Lichtmanagement in OLEDs

Dieses Kapitel behandelt Polymer-OLEDs mit Goldgittern auf der ITO-Anode und den Einsatz dieser Gitterstrukturen für das Lichtmanagement in OLEDs.¹ Für die Herstellung dieser Art von Gitter wurde Laserinterferenzlithographie (LIL) und ein Lift-off-Verfahren verwendet, was ein Hochskalieren der hier vorgestellten Prozesse bis zum industriellen Maßstab ermöglicht [55]. Die hergestellten Goldgitter in OLEDs dienen nicht nur als Auskoppelelement für Wellenleitermoden in den Bauteilen, sie erlauben zudem eine Auskopplung von Substratmoden und ändern die Microcavity in den OLEDs. Letzteres hat beispielsweise Auswirkungen auf die spektralen Eigenschaften der OLEDs und auf die Verteilung der Lichtemission in Wellenleiter- und Substratmoden. Im Folgenden wird der Einfluss der anodenseitigen Goldgitter auf die optischen und elektrischen Bauteileigenschaften untersucht. Zudem werden optische Bauteilsimulationen diskutiert und den experimentellen Daten gegenübergestellt. Die Ergebnisse werden mit Referenzbauteilen ohne Goldgitter und mit Bauteilen mit durchgängigen Goldschichten verglichen.

6.1 Herstellung

In Abbildung 6.1 ist der Aufbau der fünf untersuchten OLEDs schematisch dargestellt. Bauteil A hat ein 15 nm tiefes eindimensionales Goldgitter, Bauteil B eine durchgehende Goldschicht von 15 nm. Bauteil C besitzt ein 30 nm tiefes eindimensionales Goldgitter und Bauteil D eine durchgängige Goldschicht mit einer Dicke von 30 nm. Das Referenzbauteil E wurde gänzlich ohne Goldgitter oder Goldschicht hergestellt. Oberhalb des Goldgitters oder der Goldschicht befindet sich bei allen Bauteilen jeweils eine etwa 30 nm dicke PEDOT:PSS-Schicht. Auf diese folgt eine ca. 120 nm dicke Schicht des Emittermaterials Super Yellow. Den Abschluss bildet die Kathode, die aus Calcium und Aluminium besteht.

Der Herstellungsprozess gliederte sich in zwei Teile. In einem ersten Schritt wurden die Gitterstrukturen auf vorbeschichtete ITO-Substrate aufgebracht. Anschließend wurden auf diesen Substraten Polymer-OLEDs hergestellt.

6.1.1 Herstellung der Gitter

Zur Herstellung der eindimensionalen Bragg-Gitter aus Gold wurde die LIL (siehe Abschnitt 3.2.5) eingesetzt. Den Ausgangspunkt für die Gitterherstellung stellten quadratische Glassub-

¹Teile der Ergebnisse dieses Kapitels wurden bereits in Referenz [191] veröffentlicht.



Abb. 6.1: Schematischer Aufbau der hergestellten Bauteile. Bauteil A hat ein 15 nm tiefes eindimensionales Goldgitter, Bauteil B eine durchgehende Goldschicht von 15 nm. Bauteil C besitzt ein 30 nm tiefes eindimensionales Goldgitter und Bauteil D eine durchgängige Goldschicht mit einer Dicke von 30 nm. Das Referenz-Bauteil E wurde gänzlich ohne Goldgitter oder Goldschicht hergestellt. strate der Größe $25 \,\mathrm{mm} \times 25 \,\mathrm{mm}$ dar, die bereits mit einer 130 nm dicken ITO-Schicht versehen waren. In Abbildung 6.2 sind die Prozessschritte zur Gitterherstellung schematisch dargestellt. Nach dem ultraschallunterstützten Reinigen mit Aceton, Isopropanol und einer anschließenden Behandlung mit einem Sauerstoffplasma wurde eine Monolage HMDS (Hexamethyldisilazan) als Haftvermittler für den hydrophoben Fotolack aufgebracht. Dies geschah in einem Exsikkator, in dem das Substrat HMDS-Dämpfen ausgesetzt wurde. Auf die Substrate wurde anschließend der Fotolack AR-P 3170 der Firma Allresist aufgeschleudert und für 60s bei 80°C ausgebacken. Vor der Interferenzbelichtung wurden die Substratkanten schwarz eingefärbt, um ungewollte Übergitter durch Reflexionen an diesen Kanten zu unterdrücken. Anschließend wurde die Interferenzbelichtung mit einer Dosis von 32 mJ/cm² durchgeführt. Dabei wurde eine Gitterperiode von $\Lambda = 375$ nm eingestellt. Für die Entwicklung des Fotolacks wurde der Entwickler AR 300-35 der Firma Allresist eingesetzt. Die Entwicklung dauerte jeweils 40s und wurde mit deionisiertem Wasser gestoppt. Das auf diese Weise erhaltene Lackgitter wurde im Anschluss mit einer Goldschicht der gewünschten Dicke bei ca. $5 \cdot 10^{-6}$ mbar bedampft. Der Lift-off-Prozess war der kritischste Schritt bei der Gitterherstellung. Die besten Ergebnisse wurden erzielt, wenn die Probe zunächst ca. 1 h in Aceton eingelegt und anschließend für 15-30s in Acton in ein Ultraschallbad gestellt wurde. Bei anderen Methoden, insbesondere beim Einsatz von Removern oder direkter Ultraschallbehandlung, kam es zu verbleibenden Lackresten oder abgelösten Goldstegen, die sich über die Gitterstrukturen legen können. Nach dem Ultraschallbad in Aceton erfolgte ein Spülen der Proben mit Isopropanol und das Trockenblasen mit Stickstoff. In Abbildung 6.3(a) ist eine REM-Aufnahmen eines erfolgreich hergestellten Goldgitters zu sehen. Abbildung 6.3(b) zeigt einen größeren Ausschnitt der Probe und verdeutlicht die Eignung der gewählten Methoden zur Herstellung nanoskaliger Gitterstrukturen auf großen Flächen. Abbildung 6.3(c) zeigt eine AFM-Aufnahme eines Goldgitters.

6.1.2 OLED-Herstellung

Im Anschluss an die Gitterherstellung wurden Polymer-OLEDs auf den Substraten gebaut. Es handelt sich dabei um Bottom-emission-Bauteile, deren Emission durch das Gitter, die Anode und das Glassubstrat erfolgt. Der Aufbau der OLEDs ist in Abbildung 6.1 dargestellt. Ihr Energieniveaudiagramm ist in Abbildung 6.4(a) zu sehen. Das Fermi-Niveau von Gold liegt mit $E_{\text{Fermi}} = -5,2 \text{ eV}$ im Bereich der Anodenmaterialien [84]. Vor der Prozessierung der OLED-Schichten wurden die Substrate mit den Goldgittern einem Sauerstoffplasma ausgesetzt, was einerseits eine reinigende Wirkung hat und andererseits die Austrittsarbeit erhöht (siehe hierzu auch Abschnitt 3.2.1). Auf den typischen Reinigungsprozess mit Aceton und Isopropanol im Ultraschallbad wurde an dieser Stelle verzichtet, um den Gittern keinen Schaden zuzufügen. Als erste Schicht wurde PEDOT:PSS auf die Substrate mit den Goldgittern aufgebracht. PEDOT:PSS fungiert als Lochinjektions- und Lochtransportschicht, wie am Energieniveaudia-



Abb. 6.2: Schematische Darstellung der Prozessschritte zur Herstellung der Goldgitter. (1) Ausgangspunkt: Mit ITO beschichtete Glassubstrate. (2) Aufbringen des Haftvermittlers HMDS. (3) Aufbringen des Fotolacks. (4) Laserinterferenzbelichtung. (5) Entwickeln des Fotolacks. (6) Bedampfen mit Gold. (7) Lift-off-Prozess. (8) Goldgitter nach Entfernen des Fotolacks.



Abb. 6.3: (a) und (b) REM-Aufnahmen hergestellter Goldgitter. (c) AFM-Aufnahme eines Goldgitters.



Abb. 6.4: (a) Energieniveaudiagramm der hergestellten Referenz-OLED. Das Fermi-Niveau von Gold liegt mit $E_{\text{Fermi}} = -5,2 \,\text{eV}$ im Bereich der Anodenmaterialien [84]. (b) Fotografie einer OLED mit Goldgittern auf der ITO-Anode im Betrieb. Zu sehen sind ebenfalls drei weitere OLEDs auf dem gleichen Substrat, die nicht in Betrieb sind.

gramm in Abbildung 6.4(a) zu erkennen ist. Es wurde mit 2000 min^{-1} aufgeschleudert, wodurch sich eine ca. 30 nm dicke Schicht ergab. Als Emitter wurde Super Yellow verwendet, welches mit 1000 min^{-1} aufgeschleudert wurde. Um die ca. 120 nm dicken Schichten zu erhalten, wurde Super Yellow in einer Toluollösung von 5 mg/ml verwendet. Als Kathodenmaterial diente Calcium, dessen Austrittsarbeit nahe am LUMO-Niveau von Super Yellow liegt. Um die sehr reaktive Calciumschicht vor Oxidation zu schützen, schließt eine Aluminiumschicht die OLEDs nach oben ab. Diese Schicht sorgt zudem für eine gute elektrische und thermische horizontale Leitfähigkeit der Kathode. Da die OLEDs durch das sehr reaktive Calcium unter Umgebungsbedingungen dennoch sehr schnell degradieren, wurden sie verkapselt. Auf einem Substrat wurden jeweils vier OLEDs mit einer aktiven Fläche von jeweils $5 \text{ mm} \times 5 \text{ mm}$ hergestellt. Abbildung 6.4(b) zeigt ein Foto einer OLED mit Goldgittern auf der ITO-Anode im Betrieb. Zu sehen sind ebenfalls drei weitere OLEDs auf dem gleichen Substrat, die nicht in Betrieb sind.

6.2 Experimentelle Ergebnisse und Simulation

Zunächst wurde der Flächenwiderstand R_{\Box} der Gitterproben durch eine Vierpunktmessung bestimmt [180]. Der Flächenwiderstand der reinen ITO-Schicht betrug $R_{\Box} = 12,5\Omega/\Box$. Durch ein 15 nm tiefes Gitter auf der ITO-Anode sank der Flächenwiderstand auf $R_{\Box} = 7,7\Omega/\Box$. Ein 30 nm tiefes Gitter auf der ITO-Anode führte zu einem Flächenwiderstand von $R_{\Box} = 7,0\Omega/\Box$. Der Flächenwiderstand der Proben zeigte sich bei der Messung unabhängig von der Messrichtung. Die elektrische Charakterisierung der Bauteile erfolgte in dem in Abschnitt 3.3.1 beschriebenen Aufbau mit einer Source-Measure-Unit (SMU) Keithley SMU 238 der Firma Keithley Instruments. Dabei wurde auch der vom Bauteil emittierte Lichtstrom in einer Ulbrichtkugel



Abb. 6.5: (a) Strom-Spannungs-Kennlinien der fünf hergestellten Bauteile. (b) Vergleich der Effizienz der fünf hergestellten Bauteile: Strahlungsleistung als Funktion der elektrischen Leistung. (c) Vergleich der Quanteneffizienz der fünf hergestellten OLEDs: Emittierte Photonen als Funktion der Stromdichte.

gemessen. In Abbildung 6.5(a) sind die Strom-Spannungs-Kennlinien aller Bauteile dargestellt. Die Kennlinien der fünf Bauteile variieren nur geringfügig. Dies lässt sich darauf zurückführen, dass der Flächenwiderstand für diese OLEDs mit einer Fläche von 0,25 mm² nur von untergeordneter Bedeutung für den Stromtransport ist und der Strom hauptsächlich durch die Leitfähigkeiten der organischen Materialien limitiert wird. Für großflächige OLEDs ist die Reduktion des Flächenwiderstandes der Anode jedoch ein wichtiger Aspekt, um einen Helligkeitsabfall über die aktive Fläche zu vermeiden. In Abbildung 6.5(b) wird die relative Effizienz der Bauteile verglichen. Dazu ist die gesamte emittierte Strahlungsleistung als Funktion der dafür aufgewandten elektrischen Leistung aufgetragen. Die Effizienzen des Referenz-Bauteils E und des Bauteils B mit einer durchgehenden 15 nm dicken Goldschicht sind nahezu gleich. Demgegenüber ist die Effizienz von Bauteil A mit einem 15 nm tiefen Goldgitter um 25-30% erhöht. Abbildung 6.5(c) zeigt die Gesamtanzahl der emittierten Photonen als Funktion der Stromdichte. Diese Darstellung zeigt, dass die Unterschiede in der Bauteileffizienz durch eine erhöhte Quanteneffizienz



Abb. 6.6: Schemazeichnung des Prinzips zur Messung von Elektrolumineszenzspektren der Gitter-OLEDs als Funktion des Winkels θ .

von Bauteil A hervorgerufen werden. Die Bauteile C und D mit einem 30nm tiefen Goldgitter und einer durchgehenden 30nm dicken Goldschicht sind weniger effizient als das Referenzbauteil. Dies gilt sowohl für die Quanteneffizienz als auch für die Leistungseffizienz.

Um die Ursache der erhöhten Effizienz von Bauteil A zu erklären, wurden Elektrolumineszenzspektren der Gitter-OLEDs als Funktion des Winkels θ gemessen. Der Messaufbau ist in Abschnitt 3.3.2 detailliert beschrieben. In Abbildung 6.6 ist das Messprinzip schematisch dargestellt. Eine Multimode-Glasfaser (Kerndurchmesser 400 µm) bewegt sich relativ zur OLED in der Ebene mit $\varphi = 0^{\circ}$, die senkrecht auf den Gitterstegen steht, um die winkelabhängige Bauteilemission zu erfassen. Das durch die Glasfaser eingefangene Licht wird schließlich mit einem Spektrometer (Acton Research Corporation SpectraPro-300i) analysiert. Abbildung 6.7(a) zeigt die Elektrolumineszenzspektren in Vorwärtsrichtung ($\theta = 0^{\circ}$) für die "15nm"-Bauteile A und B und das Referenzbauteil E. Mit steigendem Goldanteil auf der Anode sind die Spektren zunehmend rotverschoben. Diese Rotverschiebung ist bedingt durch eine Verschiebung und Verstärkung der Microcavity-Resonanz der OLEDs. In Abbildung 6.7(b) sind Simulationen mit der Software Setfos zu sehen (siehe Abschnitt 4.3). Dargestellt sind jeweils die Emission einer OLED mit einer 15nm dicken Goldschicht und einer 30nm dicken Goldschicht sowie die Emission des Referenzbauteils. Um den Einfluss der Microcavity darzustellen, wurde das Emissionsspektrum der Emitter als ideal weiß angenommen (gleiche Intensität für alle Wellenlängen). Deutlich zu sehen ist auch hier die Rotverschiebung beim Vergleich der Bauteile mit 0 und 15 nm Goldschichtdicke. Eine Dicke von 30 nm führt zwar zu einer noch ausgeprägteren Resonanz, allerdings auch zu einer wesentlich geringeren Gesamtemission.

In Abbildung 6.8(a) und (b) sind die Emissionsspektren der Gitterbauteile A und C als Funktion des Winkels θ dargestellt. Deutlich zu sehen sind Maxima als Funktion von Winkel und Wellenlänge. Um die Maxima in den Messergebnissen der Auskopplung gewisser Moden zuordnen zu können, wurden T-Matrix-Simulationen durchgeführt. Über die errechneten Propagations-



Abb. 6.7: (a) Elektrolumineszenzspektren in Vorwärtsrichtung ($\theta = 0^{\circ}$) für die Bauteile A und B mit 15 nm tiefem Goldgitter und 15 nm dicker durchgehender Goldschicht und das Referenzbauteil E. (b) Simulationen mit der Software Setfos (siehe Abschnitt 4.3). Dargestellt sind jeweils die Emission einer OLED mit einer 15 nm Goldschicht und einer 30 nm Goldschicht sowie die Emissionsspektren des Referenzbauteils, bei angenommener gleicher Emitterintensität für alle Wellenlängen.

konstanten $\beta(\lambda_0)$ der Moden und die Bragg-Formel 2.10 lassen sich die erwarteten Auskoppelwinkel bestimmen. Die OLED-Struktur besitzt eine TE₀-Mode. Ihre Winkeldispersion $\theta(\lambda_0)$ ist in Abbildung 6.8(a) und (b) als gestrichelte Linie für die Bauteile A und C mit Goldgitter eingezeichnet. Diese deckt sich sehr gut mit den experimentellen Auskoppelwinkeln. Abbildung 6.8(c) und (d) zeigen einen Vergleich der Bauteilemissionen bei 550nm und 570nm. Das 30nm tiefe Goldgitter führt hierbei zu ausgeprägteren Auskoppelmaxima, allerdings nimmt dadurch die Gesamtemission deutlich ab. Insbesondere in den Abbildungen 6.8(b) und (d) ist für Bauteil C mit dem 30nm tiefen Goldgitter zu erkennen, dass ein zweites Maximum vorhanden ist. Wie T-Matrix-Simulationen zeigten, lässt sich dieses Maximum durch die Auskopplung von Wellenleitermoden jedoch nicht erklären.

Dieses zweite Maximum ergibt sich durch Bragg-Streuung (Auskopplung) einer relativ scharf ausgeprägten Cavity-Resonanz im Bereich der Substratmoden. Abbildung 6.9 zeigt Setfos-Simulationen der Emission von Bauteilen mit 15 nm und 30 nm dicken durchgehenden Goldschichten und der Referenz-OLED bei eine Wellenlänge von $\lambda_0 = 550$ nm. Der effektive Brechungsindex n_{eff} kann dabei als verallgemeinerter Winkel aufgefasst werden. Die Setfos-Simulationen zeigen für die Bauteile mit Goldschichten ein ausgeprägtes Maximum im Bereich der Substratmoden (hellblau hinterlegter Bereich mit $1 < n_{eff} < 1.5$). Dieses Maximum und die Bragg-Formel 2.10 ergeben die erwarteten Auskoppelwinkel für das Substratmodenmaximum. In den Abbildungen 6.8(a) und (b) sind diese als durchgezogene Linien eingezeichnet und decken sich sehr gut mit den experimentell ermittelten Maxima. Abbildung 6.9 zeigt zudem, dass durch eine dickere Goldschicht die Emission in den Bereich nutzbaren Lichtes ($n_{eff} < 1$)



Abb. 6.8: (a) und (b): Emissionsspektren der Bauteile A und C mit 15 nm und 30 nm hohen Goldgittern als Funktion des Winkels θ . Dargestellt sind zudem die Winkeldispersionen $\theta(\lambda_0)$ der Auskoppelwinkel der Wellenleitermoden (gestrichelte Linie) und Substratmoden (durchgezogene Linie). (c) und (d): Vergleich der Emission der beiden Bauteile A und C bei 550 nm und 570 nm.

abnimmt. Andererseits nimmt die Emission in Substratmoden mit der Dicke der Goldschicht deutlich zu. Das Substratmodenmaximum wird zudem wesentlich schärfer mit steigender Reflektivität der Anode. Weiterhin ist zu sehen, dass auch die Wellenleitermoden (grün hinterlegter Bereich mit $n_{\text{eff}} > 1,5$) durch das Einbringen der Goldschicht unterdrückt werden, da die Super-Yellow-Schicht alleine zu dünn für das Ausbilden einer Wellenleitermode ist, wenn sie auf beiden Seiten durch dicke Metallschichten eingefasst ist.

6.3 Zusammenfassung

Die vorgestellten anodenseitigen Goldgitter erlauben es, in vielfältiger Art und Weise die Bauteileigenschaften zu beeinflussen. Insbesondere lassen sie sich für das Lichtmanagement in OLEDs einsetzen. Durch die Höhe der Gitter lässt sich die Microcavity der OLED sehr effektiv verändern und die Verteilung der Emission in nutzbares Licht, Substratmoden und Wellenlei-



Abb. 6.9: Setfos-Simulation der Emission von Bauteilen mit 15 nm und 30 nm dicken durchgehenden Goldschichten und der Referenz-OLED bei eine Wellenlänge von $\lambda_0 = 550$ nm. Der effektive Brechungsindex n_{eff} kann dabei als verallgemeinerter Winkel aufgefasst werden. Nutzbares Licht: $n_{\text{eff}} < 1$. Substratmoden: Hellblau hinterlegter Bereich mit $1 < n_{\text{eff}} < 1.5$. Wellenleitermoden: Grün hinterlegter Bereich mit $n_{eff} > 1, 5$.

termoden beeinflussen. Mit der Periode der Gitter steht ein zweiter, von der Gitterhöhe unabhängiger Parameter zur Verfügung, über den sich die Auskoppelwinkel einstellen lassen. Die vorgestellte OLED A mit einem 15 nm tiefen Goldgitter weist eine um 25-30% erhöhte Leistungseffizienz gegenüber dem Referenzbauteil E auf. Diese Erhöhung rührt hauptsächlich von einer erhöhten Quanteneffizienz her, die durch die Veränderung der Microcavity und ein daraus resultierendes verbreitertes Emissionsspektrum sowie durch die Auskopplung von Substratund Wellenleitermoden erklärt werden kann.

Die PEDOT:PSS-Schicht auf den Goldgittern sorgt dafür, dass die elektrische Charakteristik der Bauteile durch die Gitter nicht verändert oder gestört wird. Das Goldgitter hat zudem einen positiven Effekt auf den Flächenwiderstand der Anode. Durch ein 15 nm tiefes Gitter auf der ITO-Anode sinkt der Flächenwiderstand von $R_{\Box} = 12,5\Omega/\Box$ auf $R_{\Box} = 7,7\Omega/\Box$. Ein 30 nm tiefes Gitter auf der ITO-Anode führt zu einem Flächenwiderstand von $R_{\Box} = 7,0\Omega/\Box$. Dieser Effekt wirkt sich allerdings bei der untersuchten Probengröße noch nicht auf die Bauteileffizienz aus. Der verringerte Flächenwiderstand könnte jedoch für die Anwendung bei ITO-freien OLEDs oder großflächigen OLEDs von großem Interesse sein.

7 Aus- und Einkopplung durch Bragg-Gitter

Die in dieser Arbeit vorgestellten Bragg-Gitter in OLEDs haben allesamt den Zweck, Licht aus gebundenen Moden in den Lichtkegel des nutzbaren Lichtes oberhalb der Luft-Lichtlinie zu streuen (siehe Abbildung 2.16). Bei dieser Art von Streuung wird die Parallelkomponente des Wellenvektors k_x um den reziproken Gittervektor G_x des Bragg-Gitters verringert und das gestreute Licht kann das Bauteil verlassen. Aus Gleichung 2.10 wird ersichtlich, dass auch der umgekehrte Prozess möglich ist, bei dem Licht aus dem Lichtkegel des nutzbaren Lichtes mittels Bragg-Streuung am Gitter in Wellenleitermoden einkoppelt. In Kapitel 5 sind Einkoppeleffekte insbesondere bei FDTD-Simulationen in Abschnitt 5.4 zu erkennen. Sie hängen unter anderem von der lateralen Position des Emitters ab (siehe 5.27). Auch in den experimentellen Ergebnissen von Kapitel 5 sind schwache Einkoppeleffekte zu erkennen, obgleich diese nicht reproduzierbar über verschiedene Bauteile oder Chargen auftraten (siehe Abbildung 5.24(b) sowie die Ausführungen am Ende des Abschnitts 5.3).

Einkoppeleffekte sind auch bei Substratmoden zu beobachten [47]. Für eine effiziente Auskopplung der Substratmoden muss die Lichtverteilung im Substrat berücksichtigt werden, die durch den Aufbau des OLED-Dünnschichtstapels bestimmt wird (siehe Abschnitt 2.3.4). Auskoppelstrukturen können dabei nach [47] vereinfacht als Umverteilungsstrukturen aufgefasst werden. Emittiert eine OLED stark in Winkelbereiche, aus denen Photonen das Substrat von sich aus nicht verlassen können, dann kommt es durch aufgebrachte Strukturen zu einer effizienten Auskopplung. Emittiert eine OLED jedoch bereits stark vorwärtsgerichtet in das Substrat, so können aufgebrachte Strukturen an der Substrataußenseite netto zu einer Verschlechterung der Auskoppleffizienz führen.

In diesem Kapitel werden Einkoppeleffekte auch für gebundene Wellenleitermoden gezeigt. Dazu werden zwei OLED-Schichtaufbauten miteinander verglichen. In beide OLEDs wurden Goldgitter eingebracht. Der unterschiedliche Schichtaufbau führt für das Bauteil 1 zur Auskopplung von Wellenleitermoden, während bei Bauteil 2 die Einkopplung dominiert. Den experimentellen Ergebnissen dieses Kapitels werden im Folgenden auch Bauteilsimulationen mit der T-Matrix-Methode und der Software Setfos gegenübergestellt, mit denen sich das unterschiedliche Verhalten der beiden Bauteile erklären lässt.¹

¹Teile der Ergebnisse dieses Kapitels wurden bereits in Referenz [192] veröffentlicht.



Abb. 7.1: Schichtaufbau der hergestellten OLEDs. Bei Bauteil 1 beträgt die Gittertiefe 15 nm, bei Bauteil 2 30 nm. Die Dicke der Super-Yellow-Schicht beträgt bei Bauteil 1 120 nm und bei Bauteil 2 50 nm. Die Referenz-OLED wurde ohne Gitter und mit einer Super-Yellow-Dicke von 120 nm hergestellt.

7.1 Probendesign und Herstellung

Die Verwendung eines metallischen Bragg-Gitters ermöglicht neben der reinen Strukturierung zur Auskopplung durch Bragg-Streuung auch die effiziente Beeinflussung der Bauteil-Microcavity. Dadurch lässt sich die Abstrahlcharakteristik und das Modenprofil in der OLED steuern. In Kapitel 6 wird gezeigt, dass sich damit auch die Bauteileffizienz positiv beeinflussen lässt.

Im Folgenden wird ein Experiment diskutiert, das Einkopplung in Wellenleitermoden über ein Bragg-Gitter in OLEDs demonstriert. Es wird gezeigt, dass das Einbringen von Bragg-Gittern je nach Aufbau der Bauteile zur Auskopplung aus oder zur Einkopplung in Wellenleitermoden führen kann. Zu diesem Zweck werden zwei verschiedene OLEDs mit Bragg-Gittern miteinander verglichen. In Abbildung 7.1 ist der Aufbau von Bauteil 1 und Bauteil 2 sowie einer Referenz-OLED dargestellt. Bei Bauteil 1 und Bauteil 2 wurde auf die ITO-Anoden jeweils ein eindimensionales Bragg-Gitter aus Gold aufgebracht. Die Gitterperiode betrug dabei jeweils $\Lambda_x = 375$ nm. Der Aufbau der beiden in diesem Kapitel diskutierten Bauteile unterscheidet sich in den Dicken der Goldgitter und der Emitterschicht aus Super Yellow voneinander. Bei Bauteil 1 beträgt die Gittertiefe 15nm, bei Bauteil 2 30nm. Die Dicke der Super-Yellow-Schicht beträgt bei Bauteil 1 120nm und bei Bauteil 2 50nm. Die Referenz-OLED wurde ohne Gitter und mit einer Super-Yellow-Dicke von 120nm hergestellt. Um die ca. 120nm dicken Schichten der Referenz-OLED und des Bauteils 1 zu erhalten, wurde Super Yellow in einer Toluol-Lösung von 5 mg/ml verwendet. Für die 50 nm dicke Super-Yellow-Schicht in Bauteil 2 wurde eine Lösung von 3 mg/ml benutzt. Weitere Details zur Herstellung der Goldgitter und OLEDs sind in Kapitel 6 zu finden.

7.2 Messergebnisse und Simulation

Um die Wirkung des Gitters in den beiden Bauteilen zu untersuchen, wurden die Elektrolumineszenzspektren der verkapselten Bauteile als Funktion des Winkels θ gemessen. Das Messprinzip ist in Abbildung 6.6 dargestellt. Dabei wird die Probe in einem Goniometeraufbau relativ zu einer Multimode-Glasfaser bewegt, die zu einem Spektrometer mit einer ICCD-Kamera führt. Vor der Faser kann ein Polarisator angebracht werden, um die Polarisation der Emission zu ermitteln. Weitere Details zum Messaufbau sind in Abschnitt 3.3.2 zu finden.

In Abbildung 7.2 sind die Emissionsspektren der Referenz-OLED, von Bauteil 1 und von Bauteil 2 als Funktion des Winkels θ dargestellt. In der Emission von Bauteil 1 sind Maxima zu erkennen, die einer Winkeldispersion $\theta(\lambda_0)$ unterliegen. Bauteil 2 weist bei ähnlichen Winkeln Minima in der Emission auf. Die Emission der Referenz-OLED zeigt weder Maxima noch Minima und entspricht in guter Näherung einem lambertschen Strahler. Abbildung 7.2 zeigt zudem, dass die Emissionsspektren der drei Bauteile (integriert über alle Winkel θ) unterschiedlich sind. Gegenüber der Referenz-OLED ist die Emission von Bauteil 1 rot- und von Bauteil 2 blauverschoben. Dies lässt sich durch das Einbringen des Goldgitters und die Variation der Schichtdicken erklären, wodurch sich die Microcavity der Bauteile verändert. In den Abbildungen 7.3(a) und (b) wird die Emission bei $\lambda_0 = 550$ nm als Funktion des Winkels θ für Bauteil 1 und für Bauteil 2 gegenübergestellt, wodurch die Maxima und Minima bei bestimmten Winkeln deutlich zu erkennen sind. Abbildung 7.3(c) zeigt die TE- und TM-Emission von Bauteil 1. Die Maxima treten nur in der TE-Polarisation auf und können somit TE-Moden zugeordnet werden.

Um die Maxima und Minima zu erklären, ist in Abbildung 7.4 schematisch das Dispersionsdiagramm $\omega(k_x)$ dargestellt. Durch die Luft- und Glas-Lichtlinien sind die Bereiche des nutzbaren Lichtes, der Glasmoden und der gebundenen Moden voneinander getrennt. Durch Bragg-Streuung können diese Bereiche nun gekoppelt werden. Für die Bragg-Streuung erster Ordnung (m = 1) an einem eindimensionalen Gitter erhält man (siehe Gleichung 2.10)

$$k_x' = k_x \pm G_x.$$

Die Auskopplung einer Wellenleitermode mit Wellenvektor β wird durch

$$k'_x = \beta - G_x$$

beschrieben. Dieser Prozess ist in Abbildung 7.4 durch Pfeil 1 dargestellt. Licht wird dabei aus der Wellenleitermode in den Lichtkegel des nutzbaren Lichtes gestreut. Der umgekehrte Prozess wird durch Pfeil 2 in Abbildung 7.4 dargestellt. Mit Hilfe der Bragg-Formel lässt er sich wie folgt beschreiben:

$$\beta = k_x' = k_x + G_x.$$



Abb. 7.2: (a) Emissionsspektren von Bauteil 1, (b) von Bauteil 2 und (c) der Referenz-OLED jeweils als Funktion des Winkels θ . (d) Emissionsspektren der drei betrachteten Bauteile integriert über alle Winkel θ .



Abb. 7.3: (a) Emission von Bauteil 1 und (b) von Bauteil 2 bei einer Wellenlänge von $\lambda_0 = 550$ nm. (c) Emission von Bauteil 1 in TE- und TM-Polarisation aufgespalten.



Abb. 7.4: Dispersionsdiagramm $\omega(k_x)$ zur Klassifikation der Moden in OLEDs. Durch die Luft- und Glas-Lichtlinien sind die Bereiche des nutzbaren Lichtes, der Glasmoden und der gebundenen Moden voneinander getrennt. Durch Bragg-Streuung können diese Bereiche gekoppelt werden. Der Auskopplungsprozess $k'_x = \beta - G_x$ ist durch Pfeil 1 dargestellt. Der Einkoppelprozess $\beta = k'_x = k_x + G_x$ wird durch Pfeil 2 verdeutlicht.

Dies beschreibt die Einkopplung von Licht mit Wellenvektor k_x aus dem Bereich des nutzbaren Lichtes in eine gebundene Mode mit Wellenvektor β . Der Emitter emittiert dabei Licht zunächst in das Modenkontinuum des nutzbaren Lichtes oberhalb der Glas-Lichtlinie (Lichtkegel). Das Bragg-Gitter fungiert dann wie ein Gitterkoppler und koppelt Licht aus diesen Bereichen in die gebundene Mode ein. Für Auskopplung und Einkopplung gilt gleichermaßen, dass bei einer Wellenlänge λ_0 ein bestimmter Winkel θ aus dem Lichtkegel des nutzbaren Lichtes betroffen ist (siehe Gleichung 2.11):

$$\theta(\lambda_0, \Lambda_x) = \arcsin\left(n_{\text{eff}} - \frac{\lambda_0}{\Lambda_x}\right),$$
(7.1)

wobei Λ_x die Gitterperiode des Bragg-Gitters ist. Um diese Hypothese für Bauteil 1 und Bauteil 2 zu überprüfen, wurde mit der T-Matrix-Methode nach Moden in den beiden Bauteilen gesucht. Dabei wurde das Goldgitter als homogenes Material mit einem gemittelten Brechungsindex modelliert. In beiden Bauteilen wurden TE-Moden gefunden, aus deren effektiven Brechungsindizes n_{eff} dann mittels Gleichung 7.1 die Ein- bzw. Auskoppelwinkel θ berechnet wurden. In Abbildung 7.5(a) sind die gemessenen Maxima sowie die Simulationsergebnisse für die Auskopplung der TE-Mode für Bauteil 1 dargestellt. Durch die gute Übereinstimmung können die Maxima der Auskopplung der TE-Mode zugeordnet werden. Exemplarisch für eine Wellenlänge von $\lambda_0 = 550$ nm ist in Abbildung 7.5(b) das Intensitätsprofil einer TE-Mode in Bauteil 1 zu sehen. Abbildung 7.5(c) zeigt den Vergleich von experimentell ermittelten Einkoppelwin-



Abb. 7.5: (a) Gemessene Maxima und Simulationsergebnisse für die Auskopplung der TE-Mode aus Bauteil 1. (b) Intensitätsprofil der TE-Mode in Bauteil 1 für eine Wellenlänge von λ₀ = 550 nm.
(c) Vergleich von experimentell ermittelten Einkoppelwinkeln und den errechneten Winkeln auf Basis der T-Matrix-Simulation für Bauteil 2. (d) Intensitätsprofil der TE-Mode in Bauteil 2 für eine Wellenlänge von λ₀ = 550 nm.

keln und den errechneten Winkeln auf Basis der T-Matrix-Simulation für Bauteil 2. Auch hier stimmen Simulation und Messung sehr gut überein. In Abbildung 7.5(d) ist das Intensitätsprofil einer TE-Mode in Bauteil 2 für eine Wellenlänge von $\lambda_0 = 550$ nm dargestellt.

Die Kopplung der gebundenen Moden mit dem Modenkontinuum des nutzbaren Lichtes durch das Bragg-Gitter sollte sowohl den Einkoppel- als auch den Auskoppelprozess erlauben. Im Folgenden soll die Frage beleuchtet werden, warum es in Bauteil 1 zur Auskopplung kommt, während im Bauteil 2 die Einkopplung dominiert. Von Fermis goldener Regel in Gleichung 2.9 ausgehend, lässt sich die Übergangsrate eines angeregten Exzitons in einer OLED in eine TE-Mode wie folgt schreiben [117]:

$$W^{TE} = W_0 \cdot \frac{\pi}{2n_{\text{org}}k_0} \cdot \frac{|E_{\parallel}(z_e)|^2}{\int |E_{\parallel}(z)|^2 dz}.$$
(7.2)

Hierbei wurde bereits eine Mittelung über ein isotropes Emitterensemble durchgeführt. W_0 ist die intrinsische radiative Übergangsrate des Emitters im Material ohne Einfluss von Cavity-Effekten, n_{org} ist der Brechungsindex des Emittermaterials und E_{\parallel} ist die Parallelkomponente des elektrischen Feldes einer bestimmten Mode. Die Koordinate z läuft senkrecht zu den OLED-Schichten und z_e ist die Position des Emitters im Bauteil. Der letzte Bruch in Gleichung 7.2 ist somit ein Maß für die Feldintensität einer gewissen Mode am Ort des Emitters. In Abbildung 7.5(b) und (d) sind die Intensitätsprofile $I \propto |E_{\parallel}(z)|^2$ für Bauteil 1 und Bauteil 2 für eine Wellenlänge von $\lambda_0 = 550$ nm dargestellt. Es ist deutlich zu sehen, dass die Feldintensität der TE-Mode in der Emissionsschicht für Bauteil 1 wesentlich größer ist als für Bauteil 2. Dies ist ein Hinweis darauf, dass die Emitter in Bauteil 1 relativ gesehen wesentlich stärker in Wellenleitermoden emittieren als bei dem zweiten Bauteil. Um die Emission der Emitter in die Wellenleitermoden und in den Bereich des nutzbaren Lichtes genauer zu untersuchen, wurde die Software Setfos der Fluxim AG eingesetzt. Details zu Setfos bzw. der darin verwendeten Methode sind in Abschnitt 4.3 zu finden. Mit Hilfe von Setfos wurden eindimensionale optische Simulationen eines emittierenden Dipols (TE-Polarisation) für die beiden Bauteile durchgeführt. Wie bei den oben beschriebenen T-Matrix-Simulationen wurde auch hierbei das Goldgitter als homogenes Material mit einem gemittelten Brechungsindex modelliert. Abbildung 7.6 zeigt die berechnete Bauteilemission bei $\lambda_0 = 550$ nm als Funktion des effektiven Brechungsindex n_{eff} . Bei Bauteil 1 zeigt sich ein ausgeprägtes Maximum um $n_{\text{eff}} = 1, 6$, dass mit der TE-Grundmode zusammenhängt. Verglichen damit ist die Emission in den Lichtkegel des nutzbaren Lichtes ($n_{eff} < 1$) relativ schwach. In Bauteil 2 ist die Situation genau umgekehrt. Die Emission in das Modenkontinuum des nutzbaren Lichtes ist vergleichsweise stark, wohingegen das Maximum, das die Emission in die TE-Grundmode darstellt, relativ schwach ausgeprägt ist. Somit lässt sich ein einfaches qualitatives Modell der Emissions- und Kopplungsprozesse aufstellen. In beiden Bauteilen emittieren die Emitter sowohl in Wellenleitermoden als auch in Bereiche nutzbaren Lichtes. Über das Goldgitter werden diese Bereich miteinander gekoppelt. In Abbildung 7.7 ist das hier beschriebene qualitative Modell der Emission- und Kopplungsprozesse schematisch dargestellt. Dabei gibt das Gitter keine Netto-Streurichtung vor, sondern sorgt in erster Näherung lediglich für eine Kopplung des Wellenleiter-Zustandes an Zustände im Modenkontinuum des nutzbaren Lichtes. Der Vergleich der Bauteile 1 und 2 zeigt nun, dass die Richtung des Energietransfers über das Goldgitter mit der relativen Besetzung der Wellenleitermoden im Vergleich zur Besetzung der Moden des nutzbaren Lichtes zusammenhängt. Zusätzlich sind die Wellenleitermoden gedämpft und das nutzbare Licht verlässt das Bauteil in Richtung des Fernfeldes. Die Dämpfung der Wellenleitermoden, die hauptsächlich von den Metallkathoden und der Anode herrührt, ist verantwortlich dafür, dass die Auskopplung generell nicht effizienter stattfinden kann. Auf diesen Aspekt wird in Kapitel 8 detaillierter eingegangen.



Abb. 7.6: Simulierte Dipolemission für Bauteil 1 und Bauteil 2 als Funktion des effektiven Brechungsindex n_{eff} bei einer Wellenlänge von $\lambda_0 = 550$ nm.



Abb. 7.7: Schematische Darstellung der Emission in Wellenleitermoden und in den Bereich nutzbaren Lichtes. Zudem sind Auskopplung (1) und Einkopplung (2) durch Bragg-Streuung am Goldgitter dargestellt sowie die Modenabsorption und das Verlassen des nutzbaren Lichtes in Richtung des Fernfeldes.

7.3 Zusammenfassung und Ausblick

Anhand von zwei Bauteilen mit unterschiedlichem Schichtaufbau konnten sowohl Modenauskopplung als auch Einkoppelprozesse über Bragg-Gitter in OLEDs gezeigt werden. Die durchgeführten T-Matrix- und Setfos-Simulationen passen sehr gut zu den experimentellen Ergebnissen und ermöglichen ein einfaches qualitatives Verständnis der Emissions- und Kopplungsprozesse in den beiden untersuchten Bauteilen. In Bauteil 1 überwiegt die Auskopplung, in Bauteil 2 der Einkoppelprozess. Das Einbringen von Gitter- oder Streustrukturen in eine OLED führt demnach nicht immer notwendigerweise zu einer erhöhten Auskopplung. Es muss berücksichtigt werden, dass der konkrete Aufbau der Bauteile die Microcavity beeinflusst. Die Schichtstruktur wirkt sich so auf die Besetzung der einzelnen Moden inklusive der Emission in den Lichtkegel des nutzbaren Lichtes aus und beeinflusst letztlich auch die Auskopplung über Gitterstrukturen. Dies ist insbesondere für sehr komplexe Mehrschichtbauelement von Bedeutung, bei denen mehrere Wellenleitermoden auftreten. Hier gilt es zu vermeiden, dass Gitterstrukturen bei einer Mode zur Auskopplung und bei anderen Moden zu Einkoppeleffekten führen. Für die Maximierung der Gesamteffizienz eines Bauteils kann demnach die Auskopplung nicht unabhängig von Cavity-Effekten und den elektrischen Bauteileigenschaften betrachtet werden.

8 Modenabsorption und Auskopplung

In diesem Kapitel wird der Einfluss der Absorption in OLEDs auf die Auskopplung von Wellenleitermoden durch Bragg-Gitter untersucht. In den in Kapitel 5 untersuchten Bauteilen gibt es für den emittierten Spektralbereich mehrere Wellenleitermoden inklusive eines Oberflächenplasmonpolaritons. Ein deutlicher Auskoppeleffekt ist jedoch nur für die TE₀-Mode zu beobachten. Dies lässt sich durch den räumlichen Überlapp der Moden mit dem Bragg-Gitter und durch die Absorption der Moden bei ihrer Ausbreitung im Wellenleiter erklären. Der Überlapp einer Mode mit dem Bragg-Gitter ist entscheidend für eine effiziente Auskopplung. Andererseits wirkt die Absorption der Mode ihrer Auskopplung durch das Gitter entgegen. Um den Einfluss der Absorption auf die Modenauskopplung möglichst isoliert zu untersuchen, wird in diesem Kapitel ein Experiment mit einer vereinfachten, OLED-ähnlichen Struktur präsentiert. Der spezielle Aufbau des Bauteils ermöglicht es, die Absorption kontrolliert und möglichst unabhängig von anderen Bauteilparametern zu verändern. Über Photolumineszenzexperimente konnte damit die Auskopplung einer Wellenleitermode für verschiedene Werte der Absorption im Wellenleiter untersucht werden.

8.1 Probendesign

Der Aufbau des im Folgenden untersuchten, OLED-ähnlichen Bauteils ist in Abbildung 8.1 dargestellt. Es besteht aus einem Glassubstrat, in das ein ca. 12nm tiefes eindimensionales Bragg-Gitter mit einer Periode von 400nm geätzt wurde. Auf dem Substrat befindet sich eine Schicht des Emittermaterials Super Yellow mit einer Dicke von ca. 110nm. Auf die Super-Yellow-Schicht folgt eine ca. 550nm dicke Schicht Polyvinylalkohol (PVA). Die PVA-Schicht dient als Trägermaterial, dem unterschiedliche Konzentrationen eines Absorbermaterials beigemischt werden können. Als Absorbermaterial kam handelsübliche schwarze Druckertinte zum Einsatz.

In üblichen OLED-Bauteilarchitekturen beträgt die Dicke der ITO-Anode schon mehr als 130 nm. In dem hier diskutierten Bauteil ist die Super-Yellow-Schicht deshalb mit 110 nm relativ dick ausgelegt, um so für den emittierten Spektralbereich die Ausbildung von Wellenleitermoden zu ermöglichen. Mit einem Brechungsindex von n = 1,82 bei $\lambda_0 = 570$ nm stellt sie für die Wellenleitermoden die Hochindexschicht dar, die zwischen Glas und PVA mit Brechungsindizes von jeweils ca. n = 1,5 eingebettet ist. T-Matrix-Simulationen zeigen, dass das untersuchte Bauteil eine TE₀-Mode für den relevanten Spektralbereich aufweist. In Abbildung 8.2 ist die



Abb. 8.1: Schichtaufbau des untersuchten OLED-ähnlichen Bauteils. Von unten nach oben: Glassubstrat mit 12 nm tiefem Bragg-Gitter, Emitterschicht aus Super Yellow mit 110 nm Dicke, PVA-Schicht, in die Absorbermaterial (Druckertinte) eingebracht werden kann.



Abb. 8.2: T-Matrix-Simulation der Intensitätsverteilung der TE₀-Mode im Bauteil für eine Wellenlänge von $\lambda_0 = 570$ nm.

Intensitätsverteilung der TE₀-Mode im Bauteil bei einer Wellenlänge von $\lambda_0 = 570$ nm dargestellt. Für diese Wellenlänge ergibt sich in der PVA-Schicht ein Füllfaktor von ca. 25 %. Der effektive Brechungsindex der TE₀-Mode beträgt bei dieser Wellenlänge n = 1,59.

8.2 Herstellung

Das in diesem Kapitel verwendete Bragg-Gitter befindet sich auf der Oberseite eines Glassubstrats. Es wurde von Ulf Geyer im Rahmen seiner Promotion am LTI hergestellt [143]. Dabei wurde der selbe physikalische Ätzprozess mit einem Argon-Plasma und einer Chrom-Ätzmaske wie in Kapitel 5 zur Herstellung von Gittern in ITO-Schichten verwendet. Da Glas wesentlich resistenter gegenüber dem Argon-Plasma ist als ITO, können auf diese Weise nur Glasgitter mit



Abb. 8.3: AFM-Aufnahme der geätzten eindimensionalen Gitterstruktur im Glassubstrat. Die Gitterperiode beträgt 400 nm.

vergleichsweise geringer Tiefe hergestellt werden. In Abbildung 8.3 ist eine AFM-Aufnahme des eindimensionalen Bragg-Gitters im Glassubstrat dargestellt. Abbildung 8.4(a) zeigt ein Höhenprofil des Bragg-Gitters im Glassubstrat. Die Emitterschicht aus Super Yellow wurde durch Aufschleudern auf das Glassubstrat aufgebracht. Dafür wurde Super Yellow in einer Toluollösung von 5 mg/ml verwendet und bei 1000 min⁻¹ aufgeschleudert. Die Dicke der Emitterschicht wurde ebenfalls mit einem AFM bestimmt. In Abbildung 8.4(b) ist die AFM-Aufnahme einer Kante der Super-Yellow-Schicht zu sehen, wie sie durch das Freikratzen mit einer Pinzette entsteht. Aus dem Höhenprofil lässt sich eine Dicke von ca. 110nm ermitteln. Als Trägermaterial für die Absorberschicht diente PVA vom Typ Mowiol 4-98 von Kremers Pigmente, welches bereits als wässrige Lösung erhältlich ist. Das wasserlösliche PVA kann durch Aufschleudern auf Super-Yellow-Schichten aufgebracht werden ohne diese anzulösen. Für die Herstellung der Absorberschicht wurde die PVA-Lösung zunächst weiter mit demineralisiertem Wasser auf einen Feststoffanteil von 10% verdünnt. Danach wurde die gewünschte Menge an Druckertinte zugesetzt. Zur besseren Durchmischung wurde die PVA-Absorberlösung anschließend eine Stunde bei 60 °C in ein Ultraschallbad gestellt. Nach dem Abkühlen erfolgte das Aufbringen der PVA-Absorberschicht durch Aufschleudern bei 500 min^{-1} für 15 s und anschließend bei 3000 min^{-1} für 45 s. Nach dem Aufschleudern wurde die Absorberschicht für zwei Minuten bei 120 °C ausgebacken. Der Ausbackschritt diente zur Erhöhung der Wasserfestigkeit des Films. Die auf diese Weise hergestellten Absorberschichten weisen eine Dicke von ca. 550nm auf.

Da nur ein einziges Glassubstrat mit Gitter zur Verfügung stand, wurden die Bauteile mit unterschiedlichen Absorberkonzentrationen nacheinander auf dem selben Substrat hergestellt. Um das Gittersubstrat vor der Herstellung des nächsten Bauteils zu reinigen, wurde zunächst die Absorberschicht aus PVA und Tinte in einem Wasserbad abgelöst. Die Emitterschicht wurde entsprechend in Toluol abgelöst. Um Rückstände vollständig zu entfernen, wurde abschließend



Abb. 8.4: (a) AFM-Aufnahme des eindimensionalen Bragg-Gitters im Glassubstrat. Aus dem Höhenprofil lässt sich eine Gittertiefe von ca. 12nm ermitteln. (b) AFM-Aufnahme einer freigekratzten Kante der Super-Yellow-Schicht auf dem Glassubstrat mit Bragg-Gitter.

die Standardreinigungsprozedur für Substrate mit Aceton und Isopropanol im Ultraschallbad ausgeführt (siehe hierzu auch Abschnitt 3.2.1).

8.3 Experimentelle Ergebnisse

8.3.1 Charakterisierung der Absorberschicht

Zur Charakterisierung der Wirkung der Absorberschichten wurden diese zunächst mit verschiedenen Tintenkonzentrationen auf Glassubstraten ohne Bragg-Gitter hergestellt. Die Transmissionswerte dieser Schichten wurden mit einem UV/VIS/NIR- Transmissions-/Reflexionsspektrometer Lambda 1015 der Firma Perkin Elmer ermittelt. Die Transmission wird dabei jeweils gegen ein unbeschichtetes Glassubstrat in einem Referenzstrahlengang gemessen. In Abbildung 8.5 sind die Ergebnisse der Transmissionsmessungen dargestellt. Dabei wurde die Menge an Druckertinte in der Absorberschicht von 0 bis 11 Gew.-% variiert. Die Prozentangabe bezieht sich dabei auf das Gewicht der ursprünglichen PVA-Lösung. Die gezeigten Ergebnisse sind jeweils die gemittelten Werte dreier identisch hergestellter Proben. Die Dicke der Absorberschichten wurde jeweils mit einem Profilometer kontrolliert und die Ergebnisse bei Abweichungen auf eine Schichtdicke von 550nm umgerechnet. Durch die Transmissionsmessungen lässt sich den PVA-Absorberschichten jeweils ein imaginärer Brechungsindex zuweisen. Dabei wurde das lambert-beersche Gesetz $I(z) = I(0) \exp(-\alpha z)$ und die Beziehung $n_{imag} = \alpha \cdot \lambda/(4\pi)$ benutzt. Eine erhöhte Absorberkonzentration im PVA führt demnach zu einem höheren Ab-



Abb. 8.5: Transmissionsmessungen von Glassubstraten mit 550nm dicken PVA-Schichten, in die verschiedene Absorberkonzentrationen eingebracht wurden.

sorptionskoeffizienten α und wirkt sich über den Imaginärteil des Brechungsindex der Absorberschicht n_{imag} auch auf die Absorption der Wellenleitermode aus. In Abbildung 8.6 ist dies dargestellt. Man sieht, dass die Imaginärteile der Brechungsindizes der Absorberschichten in einem Bereich liegen, wie er bei gängigen OLED-Materialien durchaus üblich ist [193–197]. Die Imaginärteile sind jedoch um ca. zwei Größenordnungen kleiner als die Realteile der Brechungsindizes. Dies bedeutet, dass ihr Einfluss auf die Intensitätsverteilung der Mode im Bauteil vernachlässigbar ist (siehe hierzu Abschnitt 4.1.2.1 und [97, 103, 149]). Die Intensitätsverteilungen der Moden in den verschiedenen Bauteilen können deshalb in guter Näherung als gleich angenommen werden.

8.3.2 Photolumineszenzmessungen

Die Auswirkungen verschiedener Absorberkonzentrationen in der PVA-Schicht auf die Auskopplung von Wellenleitermoden wurden mittels optischer Anregung des Emittermaterials Super Yellow untersucht. Dabei wurde die oben beschriebene OLED-ähnliche Bauteilarchitektur benutzt, die in Abbildung 8.1 dargestellt ist. Für die Messungen wurde ein Goniometeraufbau verwendet, der um eine UV-Anregequelle erweitert war. Das Messprinzip ist detailliert in Abschnitt 3.3.3 beschrieben. Eine schematische Darstellung des Aufbaus ist in Abbildung 3.9 zu sehen. Abbildung 8.7 zeigt die Ergebnisse der Photolumineszenzmessungen. Die auftretenden Maxima in den Photolumineszenzspektren ergeben sich durch die Auskopplung der TE₀-Mode, wie ein Vergleich der Auskoppelwinkel mit T-Matrix-Simulationen und Gleichung 2.11 zeigt. Deutlich zu sehen ist, dass mit steigender Absorberkonzentration in der PVA-Schicht die Aus-



Abb. 8.6: Aus Transmissionsmessungen ermittelter Imaginärteil des Berchungsindex der PVA-Absorber-Schicht als Funktion der Wellenlänge.

kopplung der Wellenleitermode im Vergleich zur "Hintergrund-Photolumineszenz" stark zurückgeht. Zur besseren Vergleichbarkeit sind in Abbildung 8.8 die Photolumineszenzspektren bei einem Winkel $\theta = 9,5^{\circ}$ dargestellt, für den das Auskoppelmaximum bei etwa $\lambda_0 = 570$ nm liegt. Zudem sind die Spektren jeweils auf die Emissionsintensität in senkrechter Richtung zum Substrat bei einer Wellenlänge von $\lambda_0 = 550$ nm normiert. Insbesondere für das Bauteil mit einer reinen PVA-Schicht ohne Absorber ist deutlich zu erkennen, dass die Auskopplung einen signifikanten Beitrag zur Lichtemission liefert und diese in der Spitze um etwa das Zehnfache erhöht. Ohne Beimischung des Absorbers in die PVA-Schicht wird dieser deutliche Auskoppeleffekt durch ein Gitter von nur 12nm Gittertiefe erreicht. Ebenso deutlich ist jedoch auch die Verringerung des ausgekoppelten Lichtes mit steigender Absorberkonzentration zu erkennen. Durch die Beimischung des Absorbers wird die Auskopplung deutlich reduziert und für höhere Konzentrationen fast gänzlich unterdrückt. Dabei liegen die Absorptionswerte selbst für die höchsten beigemischten Konzentrationen, wie oben erwähnt, durchaus in der Größenordnung von Materialien wie sie beispielsweise für Anoden in OLEDs zum Einsatz kommen. Bei ITO liegt der Imaginärteil des Brechungsindex beispielsweise in der Größenordnung Im $(n_{\rm ITO}) \sim 0,01$. Dadurch wird deutlich, welchen Einfluss die Absorption auf eine effiziente Auskopplung in OLEDs hat.

8.4 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurde der Einfluss der Absorption auf die Auskopplung von Wellenleitermoden in OLEDs untersucht. Durch die Erhöhung der Konzentration eines Absorbermateri-



Abb. 8.7: Winkelaufgelöste Photolumineszenzspekten von Bauteilen, bei denen verschiedene Absorberkonzentrationen in die PVA-Schicht eingebracht wurden.



Abb. 8.8: Photolumineszenzspektren von Bauteilen mit verschiedenen Absorberkonzentrationen in der PVA-Schicht. Die Spektren wurden unter einem Winkel von $\theta = 9,5^{\circ}$ zur Oberflächennormalen aufgenommen und sind auf die Emissionsintensität bei $\lambda_0 = 550$ nm und $\theta = 0^{\circ}$ normiert.

als (schwarze Druckertinte) in einer PVA-Trägerschicht, konnten Bauteile mit unterschiedlich starker Absorption realisiert werden. Die Auskopplung der Wellenleitermode wurde in Photolumineszenzexperimenten an Bauteilen mit verschiedenen Absorberkonzentrationen in der PVA-Schicht gemessen. Das Bauteil mit reiner PVA-Schicht wies trotz einer Gittertiefe von nur 12 nm für bestimmte Wellenlängen eine bis zu zehnfach erhöhte Lichtemission durch Modenextraktion auf. Die Intensität der Auskoppel-Maxima zeigte sich dabei jedoch stark abhängig von der beigemischten Absorberkonzentration beziehungsweise der Absorption im Bauteil. Durch Absorberkonzentrationen, die Absorptionswerten und Brechungsindizes entsprechen, wie sie beispielsweise Anodenmaterialien in OLEDs besitzen, wurde die Auskopplung der Wellenleitermoden auf einen Bruchteil reduziert und ließ sich durch die höchsten verwendeten Konzentrationen fast gänzlich unterdrücken. Für eine effiziente Auskopplung von Wellenleitermoden ist deren Absorption deshalb unbedingt mit zu betrachten und idealerweise als weiterer Parameter in die Anforderungen an das OLED-Stack-Design aufzunehmen.

9 Zusammenfassung und Ausblick

In dieser Arbeit wurden Bragg-Gitter für das Lichtmanagement in organischen Leuchtdioden untersucht. Das Hauptaugenmerk lag dabei auf der Auskopplung von geführten Wellenleitermoden in den organischen Schichten und der Anode der OLEDs. In einem ersten Ansatz wurden OLEDs mit Gittern auf der Oberseite der ITO-Anode untersucht. Ein zweiter Ansatz bestand darin, auf die ITO-Schicht ein dünnes Goldgitter aufzubringen, welches anschließend mit einer PEDOT:PSS-Schicht überzogen wurde. Diese Strukturen ermöglichten auch die Beeinflussung der Abstrahlung über Microcavity-Effekte und die Auskopplung von Substratmoden.

Die untersuchten Bragg-Gitter wurden im Rahmen dieser Arbeit mittels Laserinterferenzlithographie und Ätz- beziehungsweise Lift-off-Verfahren hergestellt. Alle verwendeten Prozesse lassen sich somit bis hin zu großflächigen kommerziellen Anwendungen skalieren. Für die Untersuchung der ITO-Gitter wurde auf OLEDs aus kleinen Molekülen zurückgegriffen, die mittels thermischen Verdampfens hergestellt wurden. Die Untersuchung der Goldgitter erfolgte mit Polymer-OLEDs, da bei diesen die Goldgitter in eine PEDOT:PSS-Schicht eingebettet werden konnten.

Die experimentellen Untersuchungen der OLEDs wurden mit einem Goniometer und einem Ulbrichtkugelmessplatz durchgeführt, die beide im Rahmen dieser Arbeit aufgebaut wurden. Neben der Herstellung der Bauteile und ihrer Charakterisierung lag ein weiterer Schwerpunkt auf der Simulation der Auskoppeleffekte durch die eingebrachten Bragg-Gitter. Hierbei kamen ein eigener T-Matrix-Code, die Software FDTD-Solutions der Firma Lumerical sowie die Software Setfos der Firma Fluxim zum Einsatz. Letztere wurde zur Simulation der Lichtverteilung in unstrukturierten OLEDs verwendet. Mit Hilfe von T-Matrix-Simulationen konnten Aussagen über die Intensitätsverteilung der Wellenleitermoden im Bauteil getroffen sowie die Dispersionsrelationen der Moden berechnet werden. Das Simulationsmodell, welches mit der Software FDTD-Solutions aufgebaut wurde, erlaubte es, die Abstrahlung von OLEDs mit eindimensionalen Bragg-Gitter zu simulieren.

Für die Untersuchung von Bragg-Gittern auf der Oberseite der ITO-Anodenschicht im Großkapitel 5 wurden ein- und zweidimensionale Gitter mit Perioden zwischen $\Lambda_x = 600$ nm und $\Lambda_x = 300$ nm hergestellt und in OLEDs aus kleinen Molekülen integriert. Zur Herstellung der ITO-Gitter wurden zunächst Lackgitter über Laserinterferenzlithographie erzeugt, die anschließend über einen Lift-off-Schritt in eine Chrom-Schicht übertragen wurden. Das Chrom-Gitter diente als Ätzmaske beim physikalischen Ätzen des ITOs durch ein Argon-Plasma, da sich der Fotolack selbst nicht als Ätzmaske eignet. Eine Analyse der Resonanzen geführter Moden in den hergestellten ITO-Gitterstrukturen zeigte, dass die Periode der Gitter über makroskopische Längen sehr stabil bleibt. Dadurch kann auch auf großen Flächen eine Auskopplung unter definierten Winkeln erreicht werden. Die Wahl der Gitterperiode erlaubt somit eine Anpassung der Auskoppelstrukturen an verschiedene OLEDs. Insbesondere ist dabei der effektive Brechungsindex der geführten Moden zu berücksichtigen, der sich auf den Auskoppelwinkel auswirkt. Bei den untersuchten OLEDs konnte mit einer Gitterperiode von $\Lambda_x = 375$ nm bei der Peak-Wellenlänge von $\lambda_0 = 600$ nm eine Auskopplung der TE₀-Mode in Vorwärtsrichtung erreicht werden. Die hergestellten OLEDs wurden im Goniometer winkelaufgelöst und spektral vermessen. Der Vergleich der Messungen mit T-Matrix-Simulationen erlaubte die Zuordnung der einzelnen Maxima zu geführten Moden in den OLEDs. Maxima durch Auskopplung der TE₀-Mode waren deutlich zu erkennen und führten bei den Gittern mit $\Lambda_x = 550$ nm in etwa zu einer Verdoppelung der TE-Emission in bestimmte Raumwinkel und bei bestimmten Wellenlängen. Die Auskoppelmaxima waren bei dieser Gitterperiode so prominent hervortretend, da die erste und zweite Ordnung der Bragg-Streuung für $\lambda_0 = 600$ nm zum selben Auskoppelwinkel führen und sich überlagern. Die T-Matrix-Simulationen ergaben für die untersuchten Bauteile neben der TE₀-Mode eine SPP-Mode und eine TM₀-Mode. Auskoppelmaxima der SPP-Mode waren experimentell nicht zu finden, was konsistent mit den Simulationsergebnissen war, die für diese Mode eine Absorptionslänge von nur 130nm ergaben. Eine effiziente Wechselwirkung mit dem Gitter ist in diesem Fall nicht möglich. Auskoppelmaxima der TM₀-Mode waren ebenfalls nicht zu erkennen, da die Mode kaum Überlapp mit der Emitterzone hat. Allerdings war bei einem Bauteil ein schwacher Einkoppeleffekt zu sehen, der unter anderem die Motivation für die Experimente in Kapitel 7 war. Ein Vergleich von ein- und zweidimensionalen Gittern gleicher Gittertiefe zeigte, dass die Auskoppelmaxima bei zweidimensionalen Gittern schwächer ausgeprägt sind. Eine Erklärung dafür ist, dass die zusätzliche Strukturierung in y-Richtung die Wirkung des Gitters in x-Richtung abschwächt. Dies ist insbesondere deshalb relevant, weil die Streuung am Gitter mit der Modenabsorption konkurriert, worauf in Kapitel 8 nochmals gesondert eingegangen wird.

Mit der FDTD-Methode wurden in Kapitel 5 OLEDs mit eindimensionalen Bragg-Gittern simuliert. Die Ausrichtung der Dipole sowie ihre Position relativ zum Gitter konnten dabei untersucht werden. Es zeigte sich, dass die Auskopplung des von den Emittern abgestrahlten Lichtes stark von der Emitterposition und ihrer Orientierung abhängt. Die Simulationsergebnisse bezüglich Auskoppelwinkel, Polarisation und Dispersion deckten sich sehr gut mit den experimentellen Befunden. In der Simulation waren jedoch auch Einkoppeleffekte und Fano-Resonanzen zu erkennen, die experimentell nicht reproduzierbar auftraten. Einerseits lässt sich dies darauf zurückführen, dass lediglich zwei diskrete horizontale Emitterpositionen und eine vertikale Emitterposition berücksichtigt wurden. Bei einer Simulation und Überlagerung mehrerer Zwischenpositionen wäre mit einer Auswaschung der Resonanzen zu rechnen. Zudem können Inhomogenitäten in den realen Bauteilen zu einer Art inhomogenen Verbreiterung und Auswaschung der Resonanzen führen.

Eine Versuchsreihe mit verschiedenen Gittertiefen in der ITO-Anode zeigte, dass die Auskoppelmaxima mit zunehmender Gittertiefe erwartungsgemäß stärker hervortreten. Allerdings kam es dabei auch zu einer Abnahme der Gesamtemission der Bauteile. Die Gesamteffizienz von OLEDs mit Gittern war trotz Auskopplung von Wellenleitermoden und steileren I-V-Kennlinien geringer als die der Referenzbauteile. Dies wurde an zwei unterschiedlichen Chargen mit ein- und zweidimensionalen Gittern bestätigt. Die beobachtete Abnahme der Gesamteffizienz trat in den FDTD-Simulationen nicht auf. Daher konnte sie auf elektrische Effekte beziehungsweise eine geringere interne Quanteneffizienz zurückgeführt werden. Die Strukturierung ändert die effektiven Schichtdicken im Bauteil und die Feldverteilung, wodurch es zu einer inhomogenen Injektion kommt und die einzelnen Schichten ihre Funktion nicht mehr so effizient erfüllen können wie im unstrukturierten Bauteil.

In Kapitel 6 wurden OLEDs mit Goldgittern auf der ITO-Anode untersucht. Diese Gitterstrukturen erlauben es, in vielfältiger und effizienter Art und Weise die Bauteileigenschaften der OLEDs zu beeinflussen und lassen sich insbesondere für das Lichtmanagement in OLEDs nutzen. Durch die Höhe der Goldgitter verändert sich ihre Reflektivität und damit die Microcavity der OLED. Dies wirkt sich direkt auf die Verteilung der Emission in nutzbares Licht, Substratmoden und geführte Wellenleitermoden aus und führt auch zu einer Veränderung des Emissionsspektrums. Da es sich nicht um eine durchgängige Metallschicht handelt, steht mit der Gitterperiode ein zweiter unabhängiger Parameter zur Beeinflussung der Bauteilemission zur Verfügung. Über diesen lässt sich der Auskoppelwinkel der Wellenleitermoden einstellen. Mittels Simulationen mit der Software Setfos konnte gezeigt werden, dass sich auch Substratmoden durch die Goldgitter aus dem Bauteil auskoppeln lassen. Durch die Veränderung der Microcavity wies die Winkelverteilung der Substratmoden ein ausgeprägtes Maximum auf, das sich, bedingt durch ihre Bragg-Streuung am Gitter, dann im nutzbaren Licht wiederfinden ließ. Die vorgestellte OLED mit einem 15 nm tiefen Goldgitter wies eine um 25-30 % erhöhte Leistungseffizienz gegenüber dem Referenzbauteil auf. Es konnte gezeigt werden, dass sich diese Erhöhung vor allem auf eine erhöhte Quanteneffizienz zurückführen lässt, die durch die veränderte Microcavity und das daraus resultierende Emissionsspektrum sowie durch Auskopplung von Substrat- und Wellenleitermoden bedingt ist.

Hergestellt wurden die in Kapitel 6 diskutierten Goldgitter durch Laserinterferenzlithographie und einen Lift-off-Prozess. Sie wurden auf die ITO-Anode der OLEDs aufgebracht und anschließend mit einer PEDOT:PSS-Schicht überzogen. Diese Schicht sorgte dafür, dass durch die Goldgitter die elektrische Charakteristik der Bauteile nicht geändert oder gar gestört wurde. Die Goldgitter haben jedoch einen positive Effekt auf den Flächenwiderstand der ITO-Anode. Durch ein 15 nm tiefes Gitter auf der Anode sank der Flächenwiderstand von $R_{\Box} = 12,5 \Omega/\Box$ auf $R_{\Box} = 7,7 \Omega/\Box$. Eine Erhöhung der Gitterhöhe auf 30 nm führte zu einem weiteren Absinken des Flächenwiderstandes auf $R_{\Box} = 7 \Omega / \Box$. Für die hergestellte OLED-Größe spielte dieser Effekt jedoch keine signifikante Rolle. Für großflächige OLEDs oder ITO-freie OLEDs könnte er jedoch von großem Interesse sein.

In Kapitel 7 wurden ebenfalls Experimente an OLEDs mit Goldgittern auf der ITO-Anode vorgestellt. Ziel der diskutierten Experimente war es, Auskoppel- und Einkoppeleffekte zu untersuchen. Dazu wurden zwei OLED-Typen untersucht, die sich lediglich in den Dicken gewisser Schichten unterschieden. Im ersten untersuchten OLED-Typ wird Auskopplung aus einer Wellenleitermode in den Bereich nutzbaren Lichtes beobachtet. Im zweiten kommt es zu einer Einkopplung in die Wellenleitermode. Die Bauteile unterscheiden sich durch den Aufbau ihrer Microcavity, wodurch sich die Verteilung der Lichtemission in Wellenleitermoden und den direkt emittierten Anteil nutzbaren Lichtes bei beiden Bauteilen signifikant unterscheidet. Das Gitter koppelt die geführten Moden mit dem Bereich nutzbaren Lichts über die Bragg-Streuung, die in beide Richtungen erfolgen kann. Mit Hilfe der durchgeführten Simulationen war deutlich zu sehen, dass beim ersten Bauteil relativ viel Licht direkt in die Wellenleitermode emittiert wird. Die Bragg-Streuung führt dann effektiv zur Auskopplung. Im zweiten Bauteil war der Überlapp der Mode mit der Emissionszone sehr gering und relativ wenig Licht wird direkt in die Wellenleitermode emittiert. Über die Kopplung des Gitters an den Bereich nutzbaren Lichtes kann dieses jedoch in die Mode eingekoppelt werden, was sich als Einbrüche im Emissionsspektrum bemerkbar macht. Das Einbringen von Gittern bewirkt somit nicht notwendigerweise eine Erhöhung der Auskoppeleffizienz der Bauteile. Insbesondere für OLEDs, in denen sich mehrere Moden ausbilden können, ist dies von großer Relevanz.

Im letzten Ergebniskapitel 8 wurden Experimente vorgestellt, die den Einfluss der Absorption auf die Auskopplung von Wellenleitermoden untersuchen. Die Wechselwirkung einer Mode mit dem Bragg-Gitter führt bei ihrer Ausbreitung parallel zu den Schichtgrenzen des Bauteils zur Auskopplung. Allerdings wird die Mode bei ihrer Ausbreitung auch absorbiert. Ihre freie Weglänge wird dabei von den Absorptionskoeffizienten der Materialien beeinflusst, mit denen sie einen Überlapp hat. Insbesondere Metalle und leitfähige Anodenmaterialien begrenzen deshalb die freie Weglänge der Wellenleitermoden im Bauteil. Um die Absorption einstellen zu können, wurde ein OLED-ähnliches, vereinfachtes Bauteil hergestellt, dessen Emittermaterial optisch angeregt wurde. Der Aufbau des Bauteils erlaubte es, die Modenabsorption kontrolliert durch Beimischen eines Absorbers in eine PVA-Schicht zu variieren. Dadurch konnte der Einfluss verschiedener Absorptionskoeffizienten auf die Modenauskopplug untersucht werden. Die Auskopplung erfolgte über ein lediglich 12 nm tiefes Gitter, welches in das Glassubstrat geätzt wurde. Im Referenzbauteil, das aus einem Super-Yellow-Schichtwellenleiter bestand, der zwischen Glas und einer PVA-Schicht eingebettet war, erhöhte die Auskopplung trotz des relativ flachen Gitters die Lichtemission im Auskoppelmaximum um etwa das Zehnfache. Dies zeigt, dass bei dem untersuchten Bauteil ein relativ großer Anteil des erzeugten Lichtes in die Wellenleitermode emittiert wurde. Wurde in die PVA-Schicht jedoch ein geringer Anteil Druckertinte als Absorber eingebracht, so verringerte sich das Auskoppelmaximum signifikant. Für Absorptionskoeffizienten, die in der Größenordnung von ITO liegen, konnten lediglich noch Erhöhungen der Lichtemission um den Faktor 2 in den Auskoppelmaxima erreicht werden. Es zeigt sich somit, dass Materialien mit Absorptionskoeffizienten im Bereich des Anodenmaterials ITO die effiziente Auskopplung von Wellenleitermoden durch Absorption stark behindern können.

Die in dieser Arbeit diskutierten experimentellen und simulativen Untersuchungen zeigen, dass sich durch Bragg-Gitter auf der Anodenoberseite geführte Wellenleitermoden auskoppeln lassen. Bragg-Gitter als Auskoppelstrukturen haben den Vorteil, dass sich durch sie die Auskoppelwinkel der Moden gezielt einstellen lassen. Die auftretende Winkeldispersion könnte dabei für weiße OLEDs zum Problem werden, allerdings lässt sich diese durch Auskoppelstrukturen auf der Substrataußenseite wieder homogenisieren [198]. Da die Auskopplung durch Bragg-Streuung mit der Absorption der Moden konkurriert, muss Letztere möglichst unterdrückt werden beziehungsweise die Auskopplung möglichst effizient gestaltet werden. Möglichst tiefe Gitter an Orten mit hoher Modenintensität wären hierbei eine Möglichkeit. Wie gezeigt, können diese jedoch die elektrischen Bauteileigenschaften negativ beeinflussen. Ein Nivellieren der Gitter, ähnlich zu den Goldgittern, die in PEDOT:PSS eingebettet wurden, würde hier Abhilfe schaffen. Weiterhin ist es vorteilhaft, Gitter mit einem möglichst hohen Brechzahlunterschied herzustellen, da dadurch ebenfalls die Auskopplung effizienter wird. Wie bei den Goldgittern gesehen, können bei Gittern mit nur geringer Tiefe aber hohen Brechzahlunterschieden schon deutliche Auskoppeleffekte beobachtet werden. Hierbei wäre denkbar, die ITO-Gitter beispielsweise mit niedrigbrechenden Materialien aufzufüllen, wobei dadurch die elektrische Bauteilcharakteristik nicht gestört werden darf. Um effiziente OLEDs mit Auskoppelgittern zu erhalten, sollten die Schichtdicken der OLEDs direkt auf das strukturierte Bauteil optimiert werden. Dazu wäre eine Erweiterung bisheriger eindimensionaler Simulationsmodelle zur Berechnung der elektronischen Bauteileigenschaften [83, 168] auf zwei oder drei Dimensionen notwendig. Einen sehr effizienten Stellhebel, um das Emissionsspektrum und die Abstrahlcharakteristik zu beeinflussen, stellt das Microcavity-Design dar. Dünne Goldgitter auf der Anodenseite können, wie in dieser Arbeit gezeigt, durch eine Kombination aus Microcavity- und Auskoppeleffekten die Bauteileffizienz steigern. In nächsten Schritten müssten nun günstigere Metalle auf ihre Verwendbarkeit nahe der Anode getestet werden. Das Microcavity-Design erlaubt es zudem, die Verteilung der Moden im Bauteil zu beeinflussen und könnte dadurch auch ein Weg zur Vermeidung der Modenabsorption sein. Insbesondere sind bei dicken Bauteilen alle Moden zu betrachten, da es durch eingebrachte Gitter, wie im 7. Kapitel demonstriert, auch zu Einkoppeleffekten kommen kann. Die FDTD-Simulationen in Kapitel 5 haben gezeigt, dass die Emitterposition und -ausrichtung ebenfalls einen großen Einfluss auf die Auskoppeleffizienz haben. Somit wäre es vorteilhaft, wenn sich die Emittermoleküle bei der Herstellung derart anordnen ließen, dass ihre Dipolmomente parallel zu den eindimensionalen Gittern zu liegen kommen. Einerseits würde dann ein Großteil des Lichtes direkt in den Bereich nutzbaren Lichtes emittiert, zum anderen könnte das Licht, welches in Wellenleitermoden emittiert wird, effizient mit dem eindimensionalen Gitter wechselwirken. Aus den in dieser Arbeit vorgestellten Ergebnissen lassen sich somit eine Vielzahl von Ansatzpunkten ableiten, um die Lichtauskopplung von OLEDs weiter zu steigern und OLEDs in Zukunft zu noch effizienteren Lichtquellen zu machen.
Literaturverzeichnis

- [1] A. Bernanose, M. Comte, and P. Vouaux, "Sur un nouveau mode d'émission lumineuse chez certains composés organiques," *J. Chim. Phys.*, vol. 50, pp. 64–68, 1953.
- [2] A. Bernanose and G. Marquet, "Électroluminescence du carbazol par les champs électriques alternatifs - caractérisation de l'électrophotoluminescence organique," J. Chim. Phys., vol. 51, pp. 255–259, 1954.
- [3] M. Pope, H. P. Kallmann, and P. Magnante, "Electroluminescence in Organic Crystals," *Journal of Chemical Physics*, vol. 38, no. 8, pp. 2042–2043, 1963.
- [4] W. Helfrich and W. Schneider, "Recombination radiation in anthracene crystals," *Physical Review Letters*, vol. 14, no. 7, pp. 229–232, 1965.
- [5] D. F. Williams and M. Schadt, "A Simple Organic Electroluminescent Diode," *Proceedings of the IEEE*, vol. 102, no. 11, p. 476, 1970.
- [6] C. K. Chiang, C. R. Fincher, Y. W. Park, and A. J. Heeger, "Electrical Conductivity in Doped Polyacetylene," *Physical Review Letters*, vol. 39, no. 17, pp. 1098–1101, 1977.
- [7] H. Shirakawa, E. J. Louis, A. J. MacDiarmid, C. K. Chiang, and A. J. Heeger, "Synthesis of Electrically Conducting Organic Polymers: Halogen Derivatives of Polyacetylene, (CH)x," J. Chem. Soc., Chem. Commun., no. 578, pp. 578–580, 1977.
- [8] C. K. Chiang, M. A. Druy, S. C. Gau, A. J. Heeger, E. J. Louis, A. G. MacDiarmid, Y. W. Park, and H. Shirakawa, "Synthesis of Highly Conducting Films of Derivatives of Polyacetylene, (CH)x," *Journal of the American Chemical Society*, vol. 100, no. 3, pp. 1013–1015, 1978.
- [9] C. W. Tang and S. A. VanSlyke, "Organic electroluminescent diodes," *Applied Physics Letters*, vol. 51, no. 12, p. 913, 1987.
- [10] J. H. Burroughes, D. D. C. Bradley, A. R. Brown, R. N. Marks, K. Mackay, R. H. Friend,
 P. L. Burns, and A. B. Holmes, "Light-emitting diodes based on conjugated polymers," *Nature*, vol. 347, no. 6293, pp. 539–541, 1990.

- [11] C. Adachi, T. Tsutsui, and S. Saito, "Confinement of charge carriers and molecular excitons within 5-nm-thick emitter layer in organic electroluminescent devices with a double heterostructure," *Applied Physics Letters*, vol. 57, no. 6, p. 531, 1990.
- [12] A. R. Brown, K. Pichler, N. C. Greenham, D. D. C. Bradley, and R. H. Friend, "Optical spectroscopy of triplet excitons and charged excitations in poly (p-phenylenevinylene) light-emitting diodes," *Chemical Physics Letters*, vol. 210, no. 1, pp. 61–66, 1993.
- [13] V. Cleave, G. Yahioglu, P. Le Barny, R. H. Friend, and N. Tessler, "Harvesting Singlet and Triplet Energy in Polymer LEDs," *Advanced Materials*, vol. 11, no. 4, pp. 285–288, 1999.
- [14] M. A. Baldo, D. F. O'Brien, Y. You, A. Shoustikov, S. Sibley, M. E. Thompson, and S. R. Forrest, "Highly efficient phosphorescent emission from organic electroluminescent devices," *Nature*, vol. 395, no. 6698, pp. 151–154, 1998.
- [15] M. A. Baldo, M. E. Thompson, and S. R. Forrest, "Phosphorescent materials for application to organic light emitting devices," *Pure and Applied Chemistry*, vol. 71, no. 11, pp. 2095–2106, 1999.
- [16] C. Adachi, M. A. Baldo, M. E. Thompson, and S. R. Forrest, "Nearly 100% internal phosphorescence efficiency in an organic light-emitting device," *Journal of Applied Physics*, vol. 90, no. 10, p. 5048, 2001.
- [17] M. Pfeiffer, K. Leo, X. Zhou, J. S. Huang, M. Hofmann, A. Werner, and J. Blochwitz-Nimoth, "Doped organic semiconductors: Physics and application in light emitting diodes," *Organic Electronics*, vol. 4, pp. 89–103, Sept. 2003.
- [18] G. He, M. Pfeiffer, K. Leo, M. Hofmann, J. Birnstock, R. Pudzich, and J. Salbeck, "High-efficiency and low-voltage p-i-n electrophosphorescent organic light-emitting diodes with double-emission layers," *Applied Physics Letters*, vol. 85, no. 17, p. 3911, 2004.
- [19] K. Walzer, B. Maennig, M. Pfeiffer, and K. Leo, "Highly Efficient Organic Devices Based on Electrically Doped Transport Layers," *Chemical Reviews*, vol. 107, pp. 1233–71, Apr. 2007.
- [20] DisplaySearch, "Small and Medium Display Active Matrix OLED Penetration to More Than Double by 2015, http://www.displaysearch.com/," 2012.
- [21] B. Geffroy, P. le Roy, and C. Prat, "Organic light-emitting diode (OLED) technology: materials, devices and display technologies," *Polymer International*, vol. 55, pp. 572– 582, June 2006.

- [22] J. Colegrove, "OLED Display and OLED Lighting: Technologies and Market Forecast," tech. rep., DisplaySearch, 2012.
- [23] B. Young, "White Paper A Preview of the Upcoming OLEDs World Summit in Berkeley, CA," tech. rep., OLED Association, 2014.
- [24] OLED-Info.com, "Sony XEL-1 OLED TV, http://www.oled-info.com/sony-xel-1," 2014.
- [25] Novaled, "OLED Displays, http://www.novaled.com/markets/oled_display/," 2014.
- [26] B. W. D'Andrade and S. R. Forrest, "White Organic Light-Emitting Devices for Solid-State Lighting," *Advanced Materials*, vol. 16, pp. 1585–1595, Sept. 2004.
- [27] F. So, J. Kido, and P. Burrows, "Organic Light-Emitting Devices for Solid-State Lighting," *MRS Bulletin*, vol. 33, no. 7, pp. 663–669, 2008.
- [28] Y.-S. Tyan, "Organic light-emitting-diode lighting overview," Journal of Photonics for Energy, vol. 1, no. 1, p. 011009, 2011.
- [29] N. T. Kalyani and S. J. Dhoble, "Organic light emitting diodes: Energy saving lighting technology - A review," *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, vol. 16, pp. 2696– 2723, June 2012.
- [30] Y.-L. Chang and Z.-H. Lu, "White Organic Light-Emitting Diodes for Solid-State Lighting," *Journal of Display Technology*, vol. 9, no. 6, pp. 459–468, 2013.
- [31] K. Ghaffarzadeh and N. Bardsley, "OLED Lighting Opportunities 2014-2025: Forecasts, Technologies, Players," tech. rep., IDTechEx, 2014.
- [32] M. Klein and K. Heuser, "Lichthimmel und Lichttapete," *Physik Journal*, vol. 7, no. 5, pp. 43–46, 2008.
- [33] J. W. Park, D. C. Shin, and S. H. Park, "Large-area OLED lightings and their applications," *Semiconductor Science and Technology*, vol. 26, p. 034002, Mar. 2011.
- [34] S. Reineke, F. Lindner, G. Schwartz, N. Seidler, K. Walzer, B. Lüssem, and K. Leo, "White organic light-emitting diodes with fluorescent tube efficiency," *Nature*, vol. 459, pp. 234–238, May 2009.
- [35] OLED-Info.com, "Konica Minolta break their own record with world's most efficient OLED panel (139 lm/W), http://www.oled-info.com/konica-minolta-break-their-ownrecord-worlds-most-efficient-oled-panel-139-lmw," 2014.

- [36] S. R. Forrest, "The path to ubiquitous and low-cost organic electronic appliances on plastic," *Nature*, vol. 428, no. 6986, pp. 911–918, 2004.
- [37] Z. B. Wang, M. G. Helander, J. Qiu, D. P. Puzzo, M. T. Greiner, Z. M. Hudson, S. Wang, Z. W. Liu, and Z. H. Lu, "Unlocking the full potential of organic light-emitting diodes on flexible plastic," *Natur Photonics*, vol. 5, no. 12, pp. 753–757, 2011.
- [38] P. E. Burrows, V. Bulovic, S. R. Forrest, L. S. Sapochak, D. M. McCarty, and M. E. Thompson, "Reliability and degradation of organic light emitting devices," *Applied Phy*sics Letters, vol. 65, no. 23, p. 2922, 1994.
- [39] Y. Sato, S. Ichinosawa, and H. Kanai, "Operation Characteristics and Degradation of Organic Electroluminescent Devices," *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, vol. 4, no. 1, pp. 40–48, 1998.
- [40] D. Y. Kondakov, W. C. Lenhart, and W. F. Nichols, "Operational degradation of organic light-emitting diodes: Mechanism and identification of chemical products," *Journal of Applied Physics*, vol. 101, no. 2, p. 024512, 2007.
- [41] K. Saxena, V. K. Jain, and D. S. Mehta, "A review on the light extraction techniques in organic electroluminescent devices," *Optical Materials*, vol. 32, pp. 221–233, Nov. 2009.
- [42] K. Hong and J.-L. Lee, "Review Paper: Recent Developments in Light Extraction Technologies of Organic Light Emitting Diodes," *Electronic Materials Letters*, vol. 7, no. 2, pp. 77–91, 2011.
- [43] N. C. Greenham, R. H. Friend, and D. D. C. Bradley, "Angular Dependence of the Emission from a Conjugated Polymer Light-Emitting Diode: Implications for Efficiency Calculations," *Advanced Materials*, vol. 6, pp. 491–494, Feb. 1994.
- [44] N. K. Patel, S. Cinà, and J. H. Burroughes, "High-Efficiency Organic Light-Emitting Diodes," *IEEE Journal on Selected Topics in Quantum Electronics*, vol. 8, no. 2, pp. 346– 361, 2002.
- [45] M.-H. Lu and J. C. Sturm, "Optimization of external coupling and light emission in organic light-emitting devices: modeling and experiment," *Journal of Applied Physics*, vol. 91, no. 2, p. 595, 2002.
- [46] A. De Almeida, B. Santos, B. Paolo, and M. Quicheron, "Solid state lighting review -Potential and challenges in Europe," *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, vol. 34, pp. 30–48, June 2014.

- [47] H. Greiner, "Light Extraction from Organic Light Emitting Diode Substrates: Simulation and Experiment," *Japanese Journal of Applied Physics*, vol. 46, pp. 4125–4137, July 2007.
- [48] M. Fujita, K. Ishihara, T. Ueno, T. Asano, S. Noda, H. Ohata, T. Tsuji, H. Nakada, and N. Shimoji, "Optical and Electrical Characteristics of Organic Light-Emitting Diodes with Two-Dimensional Photonic Crystals in Organic/Electrode Layers," *Japanese Journal of Applied Physics*, vol. 44, pp. 3669–3677, June 2005.
- [49] Y. Sun and S. R. Forrest, "Enhanced light out-coupling of organic light-emitting devices using embedded low-index grids," *Nature Photonics*, vol. 2, pp. 483–487, July 2008.
- [50] T.-W. Koh, J.-M. Choi, S. Lee, and S. Yoo, "Optical Outcoupling Enhancement in Organic Light-Emitting Diodes: Highly Conductive Polymer as a Low-Index Layer on Microstructured ITO Electrodes," *Advanced Materials*, vol. 22, pp. 1849–1853, Apr. 2010.
- [51] B. Riedel, *Effizienzsteigerung in organischen Leuchtdioden*. PhD thesis, Karlsruher Institut für Technologie (KIT), 2011.
- [52] J. M. Lupton, B. J. Matterson, I. D. W. Samuel, M. J. Jory, and W. L. Barnes, "Bragg scattering from periodically microstructured light emitting diodes," *Applied Physics Letters*, vol. 77, no. 21, p. 3340, 2000.
- [53] B. J. Matterson, J. M. Lupton, A. F. Safonov, M. G. Salt, W. L. Barnes, and I. D. W. Samuel, "Increased Efficiency and Controlled Light Output from a Microstructured Light-Emitting Diode," *Advanced Materials*, vol. 13, no. 2, pp. 123–127, 2001.
- [54] J. M. Ziebarth, A. K. Saafir, S. Fan, and M. D. McGehee, "Extracting Light from Polymer Light-Emitting Diodes Using Stamped Bragg Gratings," *Advanced Functional Materials*, vol. 14, pp. 451–456, May 2004.
- [55] A. Gombert, B. Bläsi, C. Bühler, P. Nitz, J. Mick, W. Hoß feld, and M. Niggemann, "Some application cases and related manufacturing techniques for optically functional microstructures on large areas," *Optical Engineering*, vol. 43, no. 11, pp. 2525–2533, 2004.
- [56] J. Shinar, Organic Light-Emitting Devices: A Survey. New York: Springer Verlag, 2004.
- [57] W. Brütting, *Physics of Organic Semiconductors*. Berlin: WILEY-VCH Verlag GmbH, 2005.
- [58] W. Brütting and W. Rieß, "Organische Elektronik: Grundlagen der organischen Halbleiter," *Physik Journal*, vol. 7, no. 5, pp. 33–38, 2008.

- [59] Wikimedia Commons, "http://commons.wikimedia.org," 2014.
- [60] H. Haken and H. C. Wolf, *Molekülphysik und Quantenchemie*. Berlin: Springer Verlag, 1998.
- [61] M. Pope and C. Swenberg, *Electronic Processes in Organic Crystals and Polymers*. New York: Oxford University Press, 2 ed., 1999.
- [62] U. Lemmer, "Stimulated Emission and Lasing in Conjugated Polymers," *Polymers for Advanced Technologies*, vol. 9, no. 7, pp. 476–487, 1998.
- [63] G. Klaerner and R. D. Miller, "Polyfluorene Derivatives: Effective Conjugation Lengths from Well-Defined Oligomers," *Macromolecules*, vol. 31, no. 6, pp. 2007–2009, 1998.
- [64] P. Prins, F. C. Grozema, B. S. Nehls, T. Farrell, U. Scherf, and L. D. A. Siebbeles, "Enhanced charge-carrier mobility in β-phase polyfluorene," *Physical Review B*, vol. 74, p. 113203, Sept. 2006.
- [65] O. Esenturk, R. J. Kline, D. M. Delongchamp, and E. J. Heilweil, "Conjugation Effects on Carrier Mobilities of Polythiophenes Probed by Time-Resolved Terahertz Spectroscopy," *Journal of Physical Chemistry C*, vol. 112, pp. 10587–10590, July 2008.
- [66] K. Seshan, Handbook of Thin-Film Deposition Processes and Techniques Principles, Methods, Equipement and Applications. Norwich, New York: William Andrew, 2 ed., 2002.
- [67] S. Miyata, *Organic Electroluminescent Materials and Devices*. New York: Gordon & Breach, 1997.
- [68] D. Bucknall, *Nanolithography and patterning techniques in microelectronics*. Cambridge, England: Woodhead Publishing, 2005.
- [69] X. Zhou, J. Blochwitz, M. Pfeiffer, A. Nollau, T. Fritz, and K. Leo, "Enhanced Hole Injection into Amorphous Hole-Transport Layers of Organic Light-Emitting Diodes Using Controlled p-Type Doping," *Advanced Functional Materials*, vol. 11, pp. 310–314, Aug. 2001.
- [70] A. Nollau, M. Pfeiffer, T. Fritz, and K. Leo, "Controlled n-type doping of a molecular organic semiconductor: Naphthalenetetracarboxylic dianhydride (NTCDA) doped with bis(ethylenedithio)-tetrathiafulvalene (BEDT-TTF)," *Journal of Applied Physics*, vol. 87, no. 9, p. 4340, 2000.

- [71] N. Karl and J. Marktanner, "Electron and Hole Mobilities in High Purity Anthracene Single Crystals," *Molecular Crystals & Liquid Crystals*, vol. 355, pp. 149–173, 2001.
- [72] H. Bässler, G. Schönherr, M. Abkowitz, and D. M. Pai, "Hopping transport in prototypical organic glasses," *Physical Review B*, vol. 26, no. 6, 1982.
- [73] H. Bässler, "Charge Transport in Disordered Organic Photoconductors A Monte Carlo Simulation Study," *Physica Status Solidi B*, vol. 175, no. 1, pp. 15–56, 1993.
- [74] H. Bässler, "Injection, Transport and Recombination of Charge Carriers in Organic Light-Emitting Diodes," *Polymers for Advanced Technologies*, vol. 9, no. 7, pp. 402–418, 1998.
- [75] P. W. M. Blom, M. J. M. de Jong, and M. G. van Munster, "Electric-field and temperature dependence of the hole mobility in poly(p-phenylene vinylene)," *Physical Review B*, vol. 55, pp. R656–R659, Jan. 1997.
- [76] W. Brütting, S. Berleb, and A. G. Mückl, "Device physics of organic light-emitting diodes based on molecular materials," *Organic Electronics*, vol. 2, no. 1, pp. 1–36, 2001.
- [77] P. N. Murgatroyd, "Theory of space-charge-limited current enhanced by Frenkel effect," *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 3, no. 2, p. 151, 1970.
- [78] M. Reufer, *Exziton- und Spindynamikin organischen Halbleiterlasern*. PhD thesis, Ludwig-Maximilians-Universität München, 2006.
- [79] P. W. Atkins, *Physikalische Chemie*. Weinheim: WILEY-VCH Verlag GmbH, 2 ed., 1996.
- [80] F. Schindler, J. M. Lupton, J. Feldmann, and U. Scherf, "A universal picture of chromophores in pi-conjugated polymers derived from single-molecule spectroscopy," *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, vol. 101, pp. 14695–700, Oct. 2004.
- [81] K. Müllen and U. Scherf, Organic Light-Emitting Devices: Synthesis Properties and Applications. Weinheim: WILEY-VCH Verlag GmbH, 2006.
- [82] M. Schwoerer and H. C. Wolf, Organische Molekulare Festkörper. Weinheim: WILEY-VCH Verlag GmbH, 2005.
- [83] C. Gärtner, Organic Laser Diodes: Modelling and Simulation. PhD thesis, Universität Karlsruhe (TH), 2009.
- [84] I. D. Parker, "Carrier tunneling and device characteristics in polymer light-emitting diodes," *Journal of Applied Physics*, vol. 75, no. 3, p. 1656, 1994.

- [85] J. G. Simmons, "Richardson-Schottky effect in solids," *Physical Review Letters*, vol. 15, no. 25, p. 967, 1965.
- [86] S. R. Pollack and C. E. Morris, "Electron Tunneling through Asymmetric Films of Thermally Grown Al2O3," *Journal of Applied Physics*, vol. 35, no. 5, p. 1503, 1964.
- [87] T. J. Vink, K. J. B. M. Nieuwesteeg, and G. Oversluizen, "Tunneling through thin oxide interface layers in a-Si:H Schottky diodes," *Journal of Applied Physics*, vol. 71, no. 9, p. 4399, 1992.
- [88] V. I. Arkhipov, E. V. Emelianova, Y. H. Tak, and H. Bässler, "Charge injection into lightemitting diodes: Theory and experiment," *Journal of Applied Physics*, vol. 84, no. 2, p. 848, 1998.
- [89] J. C. Scott and G. G. Malliaras, "Charge injection and recombination at the metal-organic interface," *Chemical Physics Lettersetters*, vol. 299, no. 2, pp. 115–119, 1999.
- [90] N. Koch, "Organic Electronic Devices and Their Functional Interfaces," *ChemPhysChem*, vol. 8, pp. 1438–55, July 2007.
- [91] H. Becker, S. E. Burns, and R. H. Friend, "Effect of metal films on the photoluminescence and electroluminescence of conjugated polymers," *Physical Review B*, vol. 56, p. 1893, July 1997.
- [92] M. Gerken, *Wavelength Multiplexing by Spatial Beam Shifting in Multilayer Thin-Film Structures*. PhD thesis, Stanford University, 2003.
- [93] P. Yeh, *Optical Waves in Layered Media*. Hoboken, New Jersey: John Wiley & Sons, Inc., 2005.
- [94] J. D. Jackson, *Klassische Elektrodynamik*. Berlin, New York: de Gruyter, 2002.
- [95] R. Paschotta, "Encyclopedia of Laser Physics and Technology, http://www.rp-photonics.com/effective_refractive_index.html," 2011.
- [96] B. E. A. Saleh and M. C. Teich, *Fundamentals of Photonics*. Hoboken, New Jersey: John Wiley & Sons, Inc., 2007.
- [97] S. Asada, "Waveguiding Effect on Modal Gain in Optical Waveguide Devices," *IEEE Journal of Quantum Electronics*, vol. 27, no. 4, pp. 884–885, 1991.
- [98] H. Raether, Surface Plasmons on Smooth and Rough Surfaces and on Gratings. Berlin: Springer Verlag, 1988.

- [99] W. L. Barnes, "Electromagnetic Crystals for Surface Plasmon Polaritons and the Extraction of Light from Emissive Devices," *Journal of Lightwave Technology*, vol. 17, no. 11, pp. 2170–2182, 1999.
- [100] P. A. Hobson, S. Wedge, J. A. E. Wasey, I. Sage, and W. L. Barnes, "Surface Plasmon Mediated Emission from Organic Light-Emitting Diodes," *Advanced Materials*, vol. 14, pp. 1393–1396, Oct. 2002.
- [101] W. L. Barnes, "Surface plasmon-polariton length scales: a route to sub-wavelength optics," *Journal of Optics A: Pure and Applied Optics*, vol. 8, pp. 87–93, Apr. 2006.
- [102] T. D. Visser, B. Demeulenaere, J. Haes, D. Lenstra, R. Baets, and H. Blok, "Confinement and Modal Gain in Dielectric Waveguides," *Journal of Lightwave Technology*, vol. 14, no. 5, pp. 885–887, 1996.
- [103] J. Haes, B. Demeulenaere, R. Baets, D. Lenstra, T. D. Visser, and H. Blok, "Difference between TE and TM modal gain in amplifying waveguides: analysis and assessment of two perturbation approaches," *Optical and Quantum Electronics*, vol. 29, no. 2, pp. 263– 273, 1997.
- [104] H. Yokoyama, "Physics and Device Applications of Optical Microcavities," *Science*, vol. 256, pp. 66–70, Apr. 1992.
- [105] H. Benisty, H. De Neve, and C. Weisbuch, "Impact of Planar Microcavity Effects on Light Extraction - Part I: Basic Concepts and Analytical Trends," *IEEE Journal of Quantum Electronics*, vol. 34, no. 9, pp. 1612–1631, 1998.
- [106] H. Benisty, H. De Neve, and C. Weisbuch, "Impact of Planar Microcavity Effects on Light Extraction - Part II: Selected Exact Simulations and Role of Photon Recycling," *IEEE Journal of Quantum Electronics*, vol. 34, no. 9, pp. 1632–1643, 1998.
- [107] A. Dodabalapur, L. J. Rothberg, R. H. Jordan, T. M. Miller, R. E. Slusher, and J. M. Phillips, "Physics and applications of organic microcavity light emitting diodes," *Journal* of Applied Physics, vol. 80, no. 12, p. 6954, 1996.
- [108] U. Lemmer, R. Hennig, W. Guss, A. Ochse, J. Pommerehne, R. Sander, A. Greiner, R. F. Mahrt, H. Bässler, J. Feldmann, and E. O. Göbel, "Microcavity effects in a spin-coated polymer two-layer system," *Applied Physics Letters*, vol. 66, no. 11, p. 1301, 1995.
- [109] P. K. H. Ho, D. S. Thomas, R. H. Friend, and N. Tessler, "All-Polymer Optoelectronic Devices," *Science*, vol. 285, pp. 233–236, July 1999.

- [110] N. Takada, T. Tsutsui, and S. Saito, "Control of emission characteristics in organic thinfilm electroluminescent diodes using an optical-microcavity structure," *Applied Physics Letters*, vol. 63, no. 15, p. 2032, 1993.
- [111] J. Lee, N. Chopra, and F. So, "Cavity effects on light extraction in organic light emitting devices," *Applied Physics Letters*, vol. 92, no. 3, p. 033303, 2008.
- [112] R. R. Chance, A. Prock, and R. Silbey, "Molecular fluorescence and energy transfer near interfaces," *Advances in Chemical Physics*, vol. 37, pp. 1–65, 1978.
- [113] W. L. Barnes, "Fluorescence near interfaces : The role of photonic mode density," *Journal of Modern Optics*, vol. 45, no. 4, pp. 661–669, 1998.
- [114] S. Nowy, B. C. Krummacher, J. Frischeisen, N. A. Reinke, and W. Brütting, "Light extraction and optical loss mechanisms in organic light-emitting diodes: Influence of the emitter quantum efficiency," *Journal of Applied Physics*, vol. 104, no. 12, p. 123109, 2008.
- [115] G. Björk, S. Machida, Y. Yamamoto, and K. Igeta, "Modification of spontaneous emission rate in planar dielectric microcavity structures," *Physical Review A*, vol. 44, no. 1, p. 669, 1991.
- [116] E. Fermi, "Quantum Theory of Radiation," *Reviews of Modern Physics*, vol. 4, p. 87, 1932.
- [117] V. Bulović, V. B. Khalfin, G. Gu, P. E. Burrows, D. Z. Garbuzov, and S. R. Forrest, "Weak microcavity effects in organic light-emitting devices," *Physical Review B*, vol. 58, pp. 3730–3740, Aug. 1998.
- [118] R. Bathelt, D. Buchhauser, C. Gärditz, R. Paetzold, and P. Wellmann, "Light extraction from OLEDs for lighting applications through light scattering," *Organic Electronics*, vol. 8, pp. 293–299, Aug. 2007.
- [119] T. Yamasaki, K. Sumioka, and T. Tsutsui, "Organic light-emitting device with an ordered monolayer of silica microspheres as a scattering medium," *Applied Physics Letters*, vol. 76, no. 10, p. 1243, 2000.
- [120] F. Li, X. Li, J. Zhang, and B. Yang, "Enhanced light extraction from organic lightemitting devices by using microcontact printed silica colloidal crystals," *Organic Electronics*, vol. 8, pp. 635–639, Oct. 2007.

- [121] H. J. Peng, Y. L. Ho, X. J. Yu, and H. S. Kwok, "Enhanced coupling of light from organic light emitting diodes using nanoporous films," *Journal of Applied Physics*, vol. 96, no. 3, p. 1649, 2004.
- [122] M. Punke, Organische Halbleiterbauelemente für mikrooptische Systeme. PhD thesis, Universität Karlsruhe (TH), 2007.
- [123] H. B. Michaelson, "The work function of the elements and its periodicity," *Journal of Applied Physics*, vol. 48, no. 11, p. 4729, 1977.
- [124] Y. Cao, G. Yu, C. Zhang, R. Menon, and A. J. Heeger, "Polymer light-emitting diodes with polyethylene dioxythiophene-polystyrene sulfonate as the transparent anode," *Synthetic Metals*, vol. 87, pp. 171–174, Mar. 1997.
- [125] G. Greczynski, T. Kugler, M. Keil, W. Osikowicz, M. Fahlman, and W. R. Salaneck, "Photoelectron spectroscopy of thin films of PEDOT-PSS conjugated polymer blend: a mini-review and some new results," *Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena*, vol. 121, pp. 1–17, Dec. 2001.
- [126] T. M. Brown, J. S. Kim, R. H. Friend, F. Cacialli, R. Daik, and W. J. Feast, "Built-in field electroabsorption spectroscopy of polymer light-emitting diodes incorporating a doped poly(3,4-ethylene dioxythiophene) hole injection layer," *Applied Physics Letters*, vol. 75, no. 12, p. 1679, 1999.
- [127] M. Bajpai, K. Kumari, R. Srivastava, M. N. Kamalasanan, R. S. Tiwari, and S. Chand, "Electric field and temperature dependence of hole mobility in electroluminescent PDY 132 polymer thin films," *Solid State Communications*, vol. 150, pp. 581–584, Apr. 2010.
- [128] A. Boudrioua, P. A. Hobson, B. Matterson, I. D. W. Samuel, and W. L. Barnes, "Birefringence and dispersion of the light emitting polymer MEH-PPV," *Synthetic Metals*, vol. 111-112, pp. 545–547, June 2000.
- [129] K. Koynov, A. Bahtiar, T. Ahn, C. Bubeck, and H.-H. Hoerhold, "Molecular weight dependence of birefringence of thin films of the conjugated polymer poly[2-methoxy-5-(2'-ethyl-hexyloxy)-1,4-phenylenevinylene]," *Applied Physics Letters*, vol. 84, no. 19, p. 3792, 2004.
- [130] C. W. Tang, S. A. VanSlyke, and C. H. Chen, "Electroluminescence of doped organic thin films," *Journal of Applied Physics*, vol. 65, no. 9, p. 3610, 1989.
- [131] S. B. Klinkhammer, *Durchstimmbare organische Halbleiterlaser*. PhD thesis, Karlsruher Institut für Technologie (KIT), 2013.

- [132] Sigma-Aldrich Co. LLC., "http://www.sigmaaldrich.com," 2014.
- [133] I. G. Hill and A. Kahn, "Organic semiconductor heterointerfaces containing bathocuproine," *Journal of Applied Physics*, vol. 86, no. 8, p. 4515, 1999.
- [134] R. G. Kepler, P. M. Beeson, S. J. Jacobs, R. A. Anderson, M. B. Sinclair, V. S. Valencia, and P. A. Cahill, "Electron and hole mobility in tris(8-hydroxyquinolinolato-N1,O8) aluminum," *Applied Physics Letters*, vol. 66, no. 26, p. 3618, 1995.
- [135] J.-S. Kim, F. Cacialli, and R. Friend, "Surface conditioning of indium-tin oxide anodes for organic light-emitting diodes," *Thin Solid Films*, vol. 445, pp. 358–366, Dec. 2003.
- [136] C. C. Wu, C. I. Wu, J. C. Sturm, and A. Kahn, "Surface modification of indium tin oxide by plasma treatment: An effective method to improve the efficiency, brightness, and reliability of organic light emitting devices," *Applied Physics Letters*, vol. 1348, no. 1997, pp. 3–6, 2012.
- [137] H. Kim, J. Lee, C. Park, and Y. Park, "Surface Characterization of O2-Plasma-Treated Indium-Tin-Oxide (ITO) Anodes for Organic Light-Emitting-Device Applications," *Journal of the Korean Physical Society*, vol. 41, no. 3, pp. 395–399, 2002.
- [138] S.-H. Chen, "Work-function changes of treated indium-tin-oxide films for organic lightemitting diodes investigated using scanning surface-potential microscopy," *Journal of Applied Physics*, vol. 97, no. 7, p. 073713, 2005.
- [139] J. M. Koehler and W. Fritzsche, Nanotechnology: An Introduction to Nanostructuring Techniques. Weinheim: WILEY-VCH Verlag GmbH, 2007.
- [140] F. Maier-Flaig, *Silizium-Nanokristalle für optoelektronische Anwendungen*. PhD thesis, Karlsruher Institut für Technologie (KIT), 2013.
- [141] B. Bhushan, Handbook of Nanotechnology. Berlin: Springer Verlag, 2001.
- [142] S. Gleiss, *Effizienzsteigerung in organischen Leuchtdioden durch photonische Kristallgitter*. Master thesis, Universität Karlsruhe (TH), 2008.
- [143] U. Geyer, Interferenzlithographisch strukturierte Oberflächen für lichtemittierende Bauelemente. PhD thesis, Universität Karlsruhe (TH), 2009.
- [144] M. Stroisch, *Organische Halbleiterlaser auf Basis Photonischer-Kristalle*. PhD thesis, Universität Karlsruhe, 2007.
- [145] A. Colsmann, *Ladungstransportschichten für effiziente organische Halbleiterbauelemente*. PhD thesis, Universität Karlsruhe (TH), 2008.

- [146] Gigahertz-Optik, "Light Measurement Tutorials," 2007.
- [147] T. Fuhrmann, K. Samse, J. Salbeck, A. Perschke, and H. Franke, "Guided electromagnetic waves in organic light emitting diode structures," *Organic Electronics*, vol. 4, pp. 219– 226, Dec. 2003.
- [148] M. Gerken, "Vorlesungsunterlagen zu: Entwurf optoelektronischer Bauelemente mit Matlab/Simulink," 2009.
- [149] T. D. Visser, H. Blok, and D. Lenstra, "Modal Analysis of a Planar Waveguide with Gain and Losses," *IEEE Journal of Quantum Electronics*, vol. 31, no. 10, pp. 1803–1810, 1995.
- [150] K. Ishihara, M. Fujita, I. Matsubara, T. Asano, S. Noda, H. Ohata, A. Hirasawa, H. Nakada, and N. Shimoji, "Organic light-emitting diodes with photonic crystals on glass substrate fabricated by nanoimprint lithography," *Applied Physics Letters*, vol. 90, no. 11, p. 111114, 2007.
- [151] D. Y. K. Ko and J. R. Sambles, "Scattering matrix method for propagation of radiation in stratified media: attenuated total reflection studies of liquid crystals," J. Opt. Soc. Am. A, vol. 5, no. 11, pp. 1863–1866, 1988.
- [152] K. Busch, "Lecture Notes KSOP-Doktorandenmodul: Computer Aided Design of Optical and Photonic Systems - Diffractive Optik," 2007.
- [153] A. Taflove and S. C. Hagness, *Computational Electrodynamics: The Finite-Difference Time-Domain Method*. Norwood, MA: Artech House, 3 ed., 2005.
- [154] J. B. Schneider, "Understanding the Finite-Difference Time-Domain Method, www.eecs.wsu.edu/~schneidj/ufdtd," 2010.
- [155] K. S. Yee, "Numerical Solution of Initial Boundary Value Problems Involving Maxwell's Equations in Isotropic Media," *IEEE Transactions on Antennas and Propagation*, vol. AP14, no. 3, p. 302, 1966.
- [156] A. Taflove, "Application of the Finite-Difference Time-Domain Method to Sinusoidal Steady-State Electromagnetic-Penetration Problems," *IEEE Transactions on Electromagnetic Compatibility*, vol. EMC-22, pp. 191–202, Aug. 1980.
- [157] A. Taflove and M. E. Brodwin, "Numerical Solution of Steady-State Electromagnetic Scattering Problems Using the Time-Dependent Maxwell's Equations," *IEEE Transacti*ons on Microwave Theory and Techniques, vol. 23, no. 8, pp. 623–630, 1975.

- [158] J. D. Joannopoulos, "Introduction to Meep, http://ab-initio.mit.edu/wiki/index.php/ Meep_Introduction," 2007.
- [159] J. D. Joannopoulos, S. G. Johnson, J. N. Winn, and R. D. Meade, *Photonic Crystals Molding the Flow of Light*. Princeton and Oxford: Princeton University Press, 2 ed., 2008.
- [160] G. Mur, "Absorbing Boundary Conditions for the Finite-Difference Approximation of the Time-Domain Electromagnetic-Field Equations," *IEEE Transactions on Electromagnetic Compatibility*, vol. EMC-23, pp. 377–382, Nov. 1981.
- [161] J.-P. Berenger, "A Perfectly Matched Layer for the Absorption of Electromagnetic Waves," *Journal of Computational Physics*, vol. 114, no. 2, pp. 185–200, 1994.
- [162] K. Busch, "Lecture Notes KSOP-Doktorandenmodul: Computer Aided Design of Optical and Photonic Systems - FDTD-Methode," 2007.
- [163] S. G. Johnson, "Notes on perfectly matched layers (PMLs)," *Lecture notes, Massachu-setts Institute of Technology*, pp. 1–18, 2010.
- [164] P.-R. Loh, A. F. Oskooi, M. Ibanescu, M. Skorobogatiy, and S. G. Johnson, "Fundamental relation between phase and group velocity, and application to the failure of perfectly matched layers in backward-wave structures," *Physical Review E*, vol. 79, p. 065601, June 2009.
- [165] A. Deinega and I. Valuev, "Long-time behavior of PML absorbing boundaries for layered periodic structures," *Computer Physics Communications*, vol. 182, pp. 149–151, Jan. 2011.
- [166] K. E. Oughstun and N. A. Cartwright, "On the Lorentz-Lorenz formula and the Lorentz model of dielectric dispersion," *Optics Express*, vol. 11, pp. 1541–1546, Oct. 2003.
- [167] K. Umashankar and A. Taflove, "A Novel Method to Analyze Electromagnetic Scattering of Complex Objects," *IEEE Transactions on Electromagnetic Compatibility*, vol. 24, no. 4, pp. 397–405, 1982.
- [168] Fluxim AG (Switzerland), "Semiconducting Thin Film Optics Simulator (SETFOS)."
- [169] S. Nowy, Understanding losses in OLEDs: optical device simulation and electrical characterization using impedance spectroscopy. PhD thesis, Universität Augsburg, 2010.
- [170] Fluxim, "Setfos 3 User Manual, Version 3," 2009.

- [171] W. Lukosz and R. E. Kunz, "Light emission by magnetic and electric dipoles close to a plane interface. I. Total radiated power," J. Opt. Soc. Am. A, vol. 67, no. 12, pp. 1607– 1615, 1977.
- [172] W. Lukosz and R. E. Kunz, "Light emission by magnetic and electric dipoles close to a plane dielectric interface. II. Radiation patterns of perpendicular oriented dipoles," J. Opt. Soc. Am. A, vol. 67, no. 12, pp. 1615–1619, 1977.
- [173] U. Geyer, J. Hauss, B. Riedel, S. Gleiss, U. Lemmer, and M. Gerken, "Large-scale patterning of indium tin oxide electrodes for guided mode extraction from organic lightemitting diodes," *Journal of Applied Physics*, vol. 104, no. 9, p. 093111, 2008.
- [174] J. Hauss, B. Riedel, S. Gleiss, U. Geyer, U. Lemmer, and M. Gerken, "Periodic nanostructuring for guided mode extraction in organic light-emitting diodes," *Journal of Photonics for Energy*, vol. 1, no. 1, p. 011012, 2011.
- [175] J. Hauss, B. Riedel, T. Bocksrocker, S. Gleiss, K. Huska, U. Geyer, U. Lemmer, and M. Gerken, "Periodic Nanostructures Fabricated by Laser Interference Lithography for Guided Mode Extraction in OLEDs," in *Solid-State and Organic Lighting, OSA Technical Digest (CD) (Optical Society of America, 2010)*, pp. 4–5, Optical Society of America, 2010.
- [176] J. Adam, J. Hauss, S. Gleiss, B. Riedel, U. Geyer, U. Lemmer, and M. Gerken, "Far Field Calculations and Experimental Characterization of Nanostructured OLEDs," in 2009 3rd ICTON Mediterranean Winter Conference (ICTON-MW), pp. 1–6, Dec. 2009.
- [177] N. Balasubramanian and A. Subrahmanyam, "Studies on Evaporated Indium Tin Oxide (ITO)/Silicon Junctions and an Estimation of ITO Work Function," *Journal of The Electrochemical Society*, vol. 138, no. 1, pp. 322–324, 1991.
- [178] K. Sakai, K. Utaka, S. Akiba, and Y. Matsushima, "1.5 mu-m Range InGaAsP/InP Distributed Feedback Lasers," *IEEE Journal of Quantum Electronics*, vol. 18, no. 8, pp. 1272– 1278, 1982.
- [179] Y. Nazirizadeh, J. Müller, U. Geyer, D. Schelle, E.-B. Kley, A. Tünnermann, U. Lemmer, and M. Gerken, "Optical characterization of photonic crystal slabs using orthogonally oriented polarization filters," *Optics Express*, vol. 16, pp. 7153–7160, May 2008.
- [180] L. B. Valdes, "Resistivity measurements on germanium for transistors," *Proceedings of the IRE*, 1954.

- [181] F. Völklein and T. Zetterer, *Praxiswissen Mikrosystemtechnik*. Vieweg+Teubner, 2 ed., 2006.
- [182] R. F. Kazarinov and C. H. Henry, "Second-Order Distributed Feedback Lasers with Mode Selection Provided by First-Order Radiation Losses," *IEEE Journal of Quantum Electronics*, vol. 21, no. 2, pp. 144–150, 1985.
- [183] U. Fano, "Sullo spettro di assorbimento dei gas nobili presso il limite dello spettro d'arco," *Il Nuovo Cimento*, vol. 12, no. 3, pp. 154–161, 1935.
- [184] U. Fano, "Effects of configuration interaction on intensities and phase shifts," *Physical Review*, vol. 124, pp. 1866–1878, Dec. 1961.
- [185] A. E. Miroshnichenko, S. Flach, and Y. S. Kivshar, "Fano resonances in nanoscale structures," *Reviews of Modern Physics*, vol. 82, pp. 2257–2298, Aug. 2010.
- [186] R. W. Wood, "On a Remarkable Case of Uneven Distribution of Light in a Diffraction Grating Spectrum," *Philosophical Magazine*, vol. 4, no. 21, pp. 396–402, 1902.
- [187] D. Maystre, "Theory of Wood's Anomalies," in *Plasmonics* (S. Enoch and N. Bonod, eds.), vol. 167 of *Springer Series in Optical Sciences*, ch. 2, pp. 39–83, Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg, 2012.
- [188] U. Fano, "The Theory of Anomalous Diffraction Gratings and of Quasi-Stationary Waves on Metallic Surfaces (Sommerfeld's Waves)," *JOSA*, vol. 31, no. 3, pp. 213–222, 1941.
- [189] A. Hessel and A. A. Oliner, "A New Theory of Wood's Anomalies on Optical Gratings," *Applied Optics*, vol. 4, p. 1275, Oct. 1965.
- [190] M. Fujita, T. Ueno, K. Ishihara, T. Asano, S. Noda, H. Ohata, T. Tsuji, H. Nakada, and N. Shimoji, "Reduction of operating voltage in organic light-emitting diode by corrugated photonic crystal structure," *Applied Physics Letters*, vol. 85, no. 23, p. 5769, 2004.
- [191] J. Hauss, T. Bocksrocker, B. Riedel, U. Geyer, U. Lemmer, and M. Gerken, "Metallic Bragg-gratings for light management in organic light-emitting devices," *Applied Physics Letters*, vol. 99, no. 10, p. 103303, 2011.
- [192] J. Hauss, T. Bocksrocker, B. Riedel, U. Lemmer, and M. Gerken, "On the interplay of waveguide modes and leaky modes in corrugated OLEDs," *Optics Express*, vol. 19, no. 104, pp. 851–858, 2011.
- [193] S. Hermann, O. D. Gordan, M. Friedrich, and D. R. T. Zahn, "Optical properties of multilayered Alq3/α-NPD structures investigated with spectroscopic ellipsometry," *Physica Status Solidi C*, vol. 2, pp. 4037–4042, Dec. 2005.

- [194] S. Riechel, Organic semiconductor lasers with two-dimensional distributed feedback. PhD thesis, Ludwig-Maximilians-Universität München, 2002.
- [195] Z. T. Liu, C. Y. Kwong, C. H. Cheung, A. B. Djurišić, Y. Chan, and P. C. Chui, "The characterization of the optical functions of BCP and CBP thin films by spectroscopic ellipsometry," *Synthetic Metals*, vol. 150, pp. 159–163, Apr. 2005.
- [196] C. M. Ramsdale and N. C. Greenham, "The optical constants of emitter and electrode materials in polymer light-emitting diodes," *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 36, no. 4, pp. L29–L34, 2003.
- [197] Y. Yang, X. W. Sun, B. J. Chen, C. X. Xu, T. P. Chen, C. Q. Sun, B. K. Tay, and Z. Sun, "Refractive indices of textured indium tin oxide and zinc oxide thin films," *Thin Solid Films*, vol. 510, pp. 95–101, July 2006.
- [198] T. Bocksrocker, *Technologien für das Lichtmanagement in organischen Leuchtdioden*. PhD thesis, Karlsruher Institut für Technologie (KIT), 2013.

Publikationsliste

Referierte Artikel in internationalen Zeitschriften

- J. Hauss, T. Bocksrocker, B. Riedel, U. Geyer, U. Lemmer, and M. Gerken, "Metallic Bragg-gratings for light management in organic light-emitting devices," *Applied Physics Letters*, 99, 103303 (2011)
- J. Hauss, T. Bocksrocker, B. Riedel, U. Lemmer, and M. Gerken, "On the interplay of waveguide modes and leaky modes in corrugated OLEDs," *Optics Express*, 19, A851 (2011)
- Z. Wang, J. Hauss, C. Vannahme, U. Bog, S. Klinkhammer, D. Zhao, M. Gerken, T. Mappes, and U. Lemmer, "Nanograting transfer for light extraction in organic lightemitting devices," *Applied Physics Letters*, 98, 143105 (2011)
- J. Hauss, B. Riedel, S. Gleiss, U. Geyer, U. Lemmer, and M. Gerken, "Periodic nanostructuring for guided mode extraction in organic light-emitting diodes," *Journal of Photonics for Energy*, 1, 011012 (2011)
- B. Riedel, J. Hauss, Y. Shen, M. Aichholz, U. Lemmer, and M. Gerken, "Polymer lightemitting diodes with inorganic nanocomposite interlayers for efficiency enhancement," *Journal of Photonics for Energy*, 1, 011018, (2011)
- B. Riedel, Y. Shen, J. Hauss, M. Aichholz, X. Tang, U. Lemmer, and M. Gerken, "Tailored Highly Transparent Composite Hole Injection Layer Consisting of PEDOT:PSS and SiO₂ Nanoparticles for Efficient Polymer Light Emitting Diodes," *Advanced Materials*, 23, 740 (2011)
- B. Riedel, **J. Hauss**, U. Geyer, J. Guetlein, U. Lemmer, and M. Gerken, "Enhancing outcoupling efficiency of indium-tin-oxide-free organic light-emitting diodes via nanos-tructured high index layers," *Applied Physics Letters*, 96, 243302 (2010)
- B. Riedel, J. Hauss, M. Aichholz, A. Gall, U. Lemmer, and M. Gerken, "Polymer light emitting diodes containing nanoparticle clusters for improved efficiency," *Organic Electronics*, 11, 1172, (2010)

- B. Riedel, I. Kaiser, **J. Hauss**, U. Lemmer, and M. Gerken, "Improving the outcoupling efficiency of indium-tin-oxide-free organic light-emitting diodes via rough internal interfaces," *Optics Express*, 18, A631, (2010)
- U. Geyer, **J. Hauss**, B. Riedel, S. Gleiss, U. Lemmer, and M. Gerken, "Large-scale patterning of indium tin oxide electrodes for guided mode extraction from organic light-emitting diodes," *Journal of Applied Physics*, 104, 093111, (2008)

Sonstige Veröffentlichungen

• J. Hauss, B. Riedel, and M. Gerken, "Nanotechnologie für Licht von morgen," Nanotechnologie aktuell, 3, 26 (2010)

Konferenzbeiträge

- J. Hauss, B. Riedel, T. Bocksrocker, C. Vannahme, S. Klinkhammer, M. Guttmann, U. Lemmer, and M. Gerken, "Periodic nanostructures for efficient waveguide mode extraction in OLEDs," SPIE Optics + Photonics 8115-58, San Diego, CA, USA (2011)
- Z. Wang, J. Hauss, C. Vannahme, U. Bog, S. Klinkhammer, T. Mappes, and Uli Lemmer, "Nanotransfer for light extraction in top-emitting organic light emitting devices," SPIE Optics + Photonics 8115-69, San Diego, CA, USA (2011)
- B. Riedel, J. Hauss, Y. Shen, U. Lemmer, and M. Gerken, "Inorganic/organic composite structures in OLEDs: new approaches for efficiency enhancement," SPIE Optics + Photonics 8115-81, San Diego, CA, USA (2011)
- J. Hauss, B. Riedel, U. Geyer, T. Bocksrocker, U. Lemmer, and M. Gerken, "Periodic and nonperiodic large-area nanostructuring for guided mode extraction in OLEDs," SPIE Optics + Photonics 7776-65, San Diego, CA, USA (2010)
- B. Riedel, J. Hauss, U. Geyer, J. Guetlein, U. Lemmer, and M. Gerken, "ITO-free OLEDs with a nanostructured high-index layer for improved outcoupling efficiency," SPIE Optics + Photonics 7776-61, San Diego, CA, USA (2010)
- J. Hauss, B. Riedel, T. Bocksrocker, S. Gleiss, K. Huska, U. Geyer, U. Lemmer, and M. Gerken, "Periodic Nanostructures Fabricated by Laser Interference Lithography for Guided Mode Extraction in OLEDs," Proc. OSA, Solid-State and Organic Lighting, SOThB2, Karlsruhe (2010)

- B. Riedel, **J. Hauss**, U. Geyer, U. Lemmer, and M. Gerken, "Methods for Increasing the Efficiency of Organic Light Emitting Diodes," Proc. OSA, Solid-State and Organic Lighting, SOTuB2, Karlsruhe (2010)
- J. Hauss, "Light Outcoupling in OLEDs," Prominas International Summer School, Organic Electronics, Haifa, Israel (2009)
- J. Adam, J. Hauss, S. Gleiss, B. Riedel, U. Geyer, U. Lemmer, and M. Gerken, "Far Field Calculations and Experimental Characterization of Nanostructured OLEDs, 2009 3rd ICTON Mediterranean Winter Conference, Angers, Frankreich (2010)
- B. Riedel, **J. Hauss**, I. Kaiser, J. Guetlein, U. Geyer, K. Huska, U. Lemmer, and M. Gerken, "Methods to Enhance the Efficiency of Organic Light Emitting Devices," International Symposium Technologies for Polymer Electronics TPE 10, Rudolstadt (2010)
- J. Hauss, "Enhancement of Outcoupling Efficiency in Organic Light emitting Diodes," Karlsruhe Days of Optics and Photonics, Karlsruhe (2009)
- J. Hauss, S. Gleiss, U. Geyer, B. Riedel, U. Lemmer, and M. Gerken, "Nanostructures to Enhance Light Extraction from OLEDs," DPG Frühjahrstagung, Berlin (2008)
- B. Riedel, **J. Hauss**, S. Gleiss, U. Lemmer, and M. Gerken, "Nanocolloidal Scattering Particles Integrated in OLEDs," DPG Frühjahrstagung, Berlin (2008)
- B. Riedel, **J. Hauss**, K. Dopf, U. Lemmer, and M. Gerken, "Nanocolloidal Scattering Particles Embedded in Polymer Light Emitting Diodes," Light Scattering: Mie and More, Karlsruhe (2008)
- B. Riedel, **J. Hauss**, U. Lemmer, and M. Gerken, "Incorporating Nanocolloidal Particles in Polymer Light Emitting Devices," International Symposium Technologies for Polymer Electronics TPE 08, Rudolstadt (2008)
- J. Hauss, "Enhanced Light Extraction from Organic LEDs," KSOP Autumn Colloquium 2007, Oberkochen (2007)
- J. Hauss, B. Riedel, U. Geyer, S. Peters, M. Stroisch, U. Lemmer, and M. Gerken, "Enhanced Light Extraction from Organic LEDs," International Summer School, Thin Solid Films for OLEDs and Optoelectronic Applications, Krutyn, Polen (2007)

Patente

- Boris Riedel, Martina Gerken, Uli Lemmer, Julian Hauß, "Ladungsträger-Transportschicht, Verfahren zu ihrer Herstellung und elektrooptisches Bauelement", Europäische Patentanmeldung 09010783.0-1235
- Boris Riedel, Martina Gerken, Uli Lemmer, **Julian Hauß**, "Charge-carrier transport layer for an electro-optical component, method for its production and electro-optical component", US-Patentanmeldung US 12/860,429

Referierte Artikel in internationalen Zeitschriften zu anderen Themengebieten

- J. Hauss, A. Fedorov, C. Hutter, A. Shnirman, and G. Schön, "Single-Qubit Lasing and Cooling at the Rabi Frequency," *Physical Review Letters*, 100, 1, (2008)
- J. Hauss, A. Fedorov, S. André, V. Brosco, C. Hutter, R. Kothari, S. Yeshwanth, A. Shnirman, and G. Schön, "Dissipation in circuit quantum electrodynamics: lasing and cooling of a low-frequency oscillator," *New Journal of Physics*, 10, 095018, (2008)

Betreute Arbeiten

- Tobias Bocksrocker, "Periodische Nanostrukturierung von Metallelektroden zur Effizienzsteigerung von organischen Leuchtdioden", Master thesis, Karlsruher Institut für Technologie (KIT), 2010
- Tobias Bocksrocker, "Der Einfluss von Nanopartikeln auf die Modenauskopplung in organischen Leuchtdioden", Studienarbeit, Universität Karlsruhe (TH), 2009
- Sebastian Gleiss, "Effizienzsteigerung in organischen Leuchtdioden durch photonische Kristallgitter", Diplomarbeit Physik, Universität Karlsruhe (TH), 2008
- Gregor Huber, "Einfluss der Wellenleiterabsorption auf die Auskopplungseffizienz von Bragg-Gittern in organischen Leuchtdioden", Studienarbeit, Universität Karlsruhe (TH), 2008

Danksagung

Diese letzten Seiten widme ich all denen, die durch ihre vielfältige Unterstützung zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.

An erster Stelle möchte ich Prof. Dr. Martina Gerken und Prof. Dr. Uli Lemmer für das Ermöglichen und die Betreuung dieser Arbeit danken. Beide hatten stets ein offenes Ohr für fachliche Probleme und haben an ihren Instituten ein inspirierendes und offenes Arbeitsklima geschaffen, das maßgeblich zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen hat. Viele der Kollegen, die sie an das LTI in Karlsruhe und an das ISP in Kiel geholt haben, sind mir über die Jahre zu guten Freunden geworden. Die Promotionszeit war für mich dadurch nicht nur fachlich, sondern auch zwischenmenschlich ein absoluter Gewinn!

Ein besonderer Dank gilt meinen Kollegen Boris Riedel und Ulf Geyer für die hervorragende Zusammenarbeit und die gute Zeit, die wir zusammen hatten.

Sigrid Thielbörger aus Kiel gebührt ein großes Dankeschöne für Ihren Einsatz aus Kiel für die Karlsruher Promovierenden und Ihre regelmäßigen und nachdrücklichen Motivationsanrufe bei mir.

Dankbar bin ich auch allen anderen Mitarbeitern am LTI und ISP, die zu dieser Arbeit und dem guten Arbeitsklima beigetragen haben. Besonders erwähnen möchte ich Felix Glöckler, Sönke Klinkhammer, Florian Maier-Flaig, Jan Brückner, Christoph Vannahme, Katja Dopf, Birgit Rudat, Carsten Eschenbaum, Falko Riechert, Jost Adam, Klaus Huska, Yousef Nazirizadeh, Nico Christ, Hung Do und André Gall. Zum einen gebührt ihnen Dank für den regen fachlichen Austausch, zum anderen dafür, dass es immer lustig und nie langweilig war.

Für das Korrekturlesen der Arbeit möchte ich mich bei Florian Maier-Flaig, Ulf Geyer, Sönke Klinkhammer, Jost Adam, Boris Riedel und Jan Brückner bedanken.

Bei meinen Diplomanden und Studienarbeitern Sebastian Gleiß, Tobias Bocksrocker und Gregor Huber bedanke ich mich für Ihre hervorragende Arbeit. Ein Dankeschön geht auch an Frau Henne und Frau Holeisen im LTI-Sekretariat, an das LTI-Werkstatt-Team um Herrn Sütsch, an Felix Geislhöringer, Christian Kayser, Bernd Kleiner und Thorsten Feldmann.

Der Karlsruhe School of Optics & Photonics (KSOP) danke ich für die hervorragenden Workshops und Seminare, an denen ich im Rahmen des PhD-Programms teilnehmen durfte und die daraus erwachsene Vernetzung mit anderen KSOP-Doktoranden.

Ich bedanke mich für die finanzielle Unterstützung im Rahmen des BMBF-NanoFutur-Projektes "Nanostrukturierte optoelektronische Bauelemente".

Ein steter Quell der Motivation waren in den letzten Jahren auch viele gute Freunde. Soweit sie oben noch keine Erwähnung fanden, geht hier ein Dank an: Christoph Kaiser, Stefanie Simnacher, Valentina Luderer, Sebastian Gleiß, Inga Kaiser, Benno Rösener und viele andere.

Anke gilt ein besonderer Dank! Sie ist Woche für Woche nach Karlsruhe gefahren und hat die vielen Hochs und Tiefs, die so eine Arbeit mit sich bringt, mit mir durchgestanden.

Insbesondere möchte ich meiner Schwester Sarah danken, die die gesamte Arbeit korrekturgelesen hat und auch darüber hinaus einen großen Anteil an ihrem Gelingen hatte.

Caroline danke ich für ihre liebevolle Unterstützung auf den letzten Metern und ihre große Geduld mit mir.

Ein großes Dankeschön geht an meine Eltern für ihre fortwährende Unterstützung und das Ermöglichen meines Studium und meines weiteren Werdeganges.