

Kurzzusammenfassung

In dieser Arbeit werden neuartige Laser mit verteilter Rückkopplung (DFB, engl.: *Distributed Feedback*) sowie optischer Verstärkung in Wellenleitern für Langstrecken-Oberflächenplasmon-Polaritonen (LRSPP, engl.: *Long-Range Surface Plasmon-Polariton*) demonstriert. In beiden Bauteilarten übernehmen optisch gepumpte π -konjugierte organische Polymere die Rolle des verstärkenden Materials.

In der Anfangsphase der Forschungsarbeit lag der Fokus auf der Identifizierung organischer Polymere mit optischer Verstärkung im roten Spektralbereich und der umfassenden Charakterisierung ihrer optischen Eigenschaften. Es werden zwei Klassen der konjugierten Polymere – Poly[p-phenylen-vinyl] (PPV)-Derivate und Poly[spirobifluoren] (PSF)-Copolymere – untersucht. Während bei der Anwendung in DFB-Lasern außer der positiven Netto-Verstärkung grundsätzlich keine besonderen Anforderungen an die Polymere bestehen, müssen bei ihrer Implementierung in LRSPP-Wellenleitern zwei Aspekte bedacht werden. Zum einen ist die optische Verstärkung möglichst weit im roten Teil des Spektrums erforderlich, da die plasmonischen Verluste mit zunehmender Wellenlänge rasch abnehmen. Zum anderen ist die experimentelle Umsetzbarkeit der Phasenanpassung zwischen den Oberflächenwellen auf beiden Grenzflächen des Metallfilms gefordert. Die Phasenanpassung wird in den beiden experimentell untersuchten Wellenleiterstrukturen unterschiedlich realisiert, weshalb je nach Struktur Polymere aus beiden Materialklassen zum Einsatz kommen.

Eine neue Methodik zur Realisierung der verteilten Rückkopplung in organischen Lasern wird vorgestellt. Die Bauteile beinhalten neuartige eindimensionale DFB-Gitter aus hochbrechenden CdSe-Nanokristallen (NK), welche direkt auf die Oberfläche des Emitterfilms unter Verwendung der Polydimethylsiloxan (PDMS)-Abdrucke von Master-Gittern gestempelt werden. Der Einfluss der NK-Größe und der Konzentration der prozessierten NK-Lösung auf die Qualität der Gitter und die Effizienz des Lasers wird untersucht. Die beobachtete Laseremission besitzt eine auflösungsbegrenzte Linienbreite und ein sehr ausgeprägtes Schwellenverhalten. Verglichen mit Referenzbauteilen, die zur Rückkopplung polymerbasierte interferenzlithographisch strukturierte Gitter beinhalten, besitzen die Laserbauteile mit NK-Gittern eine geringere Laserschwelle sowie einen um den Faktor vier höheren differentiellen Wirkungsgrad.

Bei den experimentell untersuchten LRSPP-Wellenleitern handelt es sich um wenige Nanometer dünne Goldfilme, die auf der einen Seite von einem passiven Dielektrikum

(OrmoClear[®]) und auf der anderen von einem Polymer mit optischer Verstärkung umgeben sind. Aus theoretischen, auf Finite-Elemente-Methode (FEM)-Simulationen gestützten Untersuchungen zu den Auswirkungen der asymmetrischen dielektrischen Umgebung auf die LRSPP-Mode werden wertvolle Erkenntnisse bezüglich der Auflösung und des Wertebereichs der Parametervariation im Experiment gewonnen. In einer der untersuchten LRSPP-Wellenleiterstrukturen wird die optische Netto-Verstärkung von $7,7 \pm 1,5 \text{ cm}^{-1}$ demonstriert, gekennzeichnet durch eine spektrale Verschmälerung und ein ausgeprägtes Schwellenverhalten der Emission in transversal magnetischer (TM)-Polarisation und einen exponentiellen Intensitätsanstieg mit der Länge des linienförmigen Anregungsbereichs. In einer anderen experimentell untersuchten LRSPP-Wellenleiterstruktur wird eine spektrale Verschmälerung der Emission in TM-Polarisation beobachtet, jedoch ist der Effekt wesentlich schwächer als in der ersten Struktur, was an der geringeren Überlappung der LRSPP-Mode mit dem verstärkenden Polymer liegt.

Abstract

In this thesis, a novel type of distributed feedback (DFB) laser as well as optical gain in long-range surface plasmon-polariton (LRSPP)-waveguides is demonstrated. In both kinds of devices, the optical gain originates from optically pumped π -conjugated organic polymers.

In the initial phase of this research effort, there was a focus on the identification of organic polymers with optical gain in the red spectral range and the comprehensive characterization of their optical properties. Two classes of conjugated polymer materials – poly(p-phenylene-vinylene) (PPV) derivatives and poly[spirobifluorene] (PSF)-copolymers – are investigated. Besides positive optical gain, there are no special requirements for application of these conjugated polymers in DFB lasers; however, there are two aspects that concern their implementation in LRSPP-waveguides to be considered. On the one hand, the optical gain must be as far as possible into the red spectral range, as the plasmonic losses decrease rapidly on the increasing wavelength. On the other hand, the phase matching between the surface plasmon waves on both interfaces of the metal film has to be experimentally feasible. The phase matching in the two experimentally investigated waveguide structures is realized in different ways, for which reason polymers of both material classes are applied.

A novel methodology for organic lasers is presented that utilizes high refractive, one-dimensional CdSe-nanocrystal (NC) gratings as the DFB component, which is transferred directly to the surface of the emitter layer by microcontact molding using polydimethylsiloxane (PDMS) replicas of master gratings. The quality of the gratings and the laser efficiency are investigated with respect to NC-size and solution concentration used to ink the PDMS stamp. The observed laser emission has a resolution-limited linewidth and a very pronounced threshold behavior. Compared to reference devices based on polymer gratings structured by means of interference lithography, the NC-grating devices show a reduced lasing threshold as well as a fourfold differential efficiency.

The experimentally investigated LRSPP-waveguides are fabricated of thin gold films which are sandwiched between a passive dielectric medium (OrmoClear[®]) and a polymer that possesses optical gain. Theoretical analysis, based on the finite element method (FEM)-simulations, of the impact of asymmetric dielectric environment on the LRSPP-mode provides valuable insights concerning the resolution and the range of values for parameter variation in the experiment. In one of the investigated LRSPP

waveguide structures, an optical net gain of $7.7 \pm 1.5 \text{ cm}^{-1}$ is demonstrated, characterized by spectral narrowing, a pronounced threshold behavior of the emission in transversal magnetic (TM) polarization, and an exponential increase of the intensity on the length of the line-shaped excitation area. In the second experimentally investigated LRSPP waveguide structure, a spectral narrowing in TM polarization is observed; however, the effect is considerably weaker than in the previous structure due to smaller overlap between the LRSPP-mode with the gain polymer.