

电抽运有机准晶光子晶体激光器及其特性研究

蔡园园 陈 笑* 李 宁 李长伟 王义全

中央民族大学理学院, 北京 100081

摘要 利用有机共轭聚合物 MEH-PPV 优良的发光特性和光子晶体对光的调制特性, 设计制备了有机半导体二维平板的准晶光子晶体激光器。该激光器是以 MEH-PPV 为增益介质, 利用二维平板准晶光子晶体点缺陷和上下电极表面作为反射膜共同构建激光器的微腔, 获得了具有激射效应的电抽运 8 重准晶垂直腔面发射激光器。该激光器的阈值电流为 8 mA, 激射波长为 606 nm, 谱线半峰全宽为 0.5 nm, 接近光纤光谱仪的分辨率极限。

关键词 激光器; 光子晶体; 电抽运; 共轭聚合物; 激射

中图分类号 TN383

文献标识码 A

doi: 10.3788/AOS201535.0614002

Electrical Pumping Organic Quasi-Crystal Laser and its Properties

Cai Yuanyuan Chen Xiao Li Ning Li Changwei Wang Yiquan

College of Science, Minzu University of China, Beijing 100081, China

Abstract A novel quasi-crystal microcavity slab laser is designed based on conjugated polymer MEH-PPV with excellent optical-electrical properties and the modulation of quasicrystal microcavity. The MEH-PPV is applied as the gain medium and achieve electrical-pumping 8-fold quasicrystal vertical-cavity surface-emitting laser based on the confinement of point-defect photonic crystal structure and the reflection between anode and cathode in the vertical direction. The current threshold of laser is 0.8 mA, and the lasing action occurs at $\lambda = 606 \text{ nm}$ with a full width at half maximum (FWHM) of 0.5 nm, limited by the resolution of the spectrometer.

Key words lasers; photonic crystal; electrical pumping; conjugated polymer; lasing

OCIS codes 140.7260; 230.3670; 230.5298

1 引 言

近年来,有机半导体作为新型的光学材料受到越来越多的重视,有机材料的发光特性在国际上引起了广泛关注,利用有机半导体材料的发光及光源器件的研究在未来全光显示中有着非常重要的应用前景^[1-2]。有机半导体面发射激光器的研究^[3-4],使结构简单、价格低廉的全固态激光器成为可能。和无机激光材料相比,有机激光材料成本低廉,简单的工艺就可制备出光学质量的薄膜。在有机半导体材料中,共轭聚合物因其受激截面和吸收截面都很大,因而增益长度将基本等于吸收长度,也更容易实现粒子数反转,这就会导致受激辐射要比自发辐射占优势^[5]。另外,作为增益介质的共轭聚合物含有丰富的共轭二键结构,可以根据需要进行分子结构设计和修饰,实现激射波长的调制,使其覆盖整个可见光谱区。1996年,Tessler等^[6]以聚合物作为增益介质的有机光抽运激光器实现后,光抽运有机激光器已经在F-P腔、波导、分布反馈等结构中实现^[5-9]。

光抽运有机半导体激光器需要激光作为抽运光源,这使其在系统集成和制备成本方面受到很大的限制,因此,电抽运有机半导体激光成为了该领域的研究热点。由于高聚物较低的载流子迁移率限制了器件只能采用薄的薄膜,这种限制在波导和分布反馈结构中会产生较高的光学损耗,因此利用微腔来调节聚合物材料的自发辐射特性,降低激射阈值,将有利于有机电抽运激光器的实现^[10]。光子晶体微腔结构是一种新

收稿日期: 2015-01-12; 收到修改稿日期: 2015-03-24

基金项目: 国家自然科学基金(11204387, 11374378)、教育部科学技术研究重点项目(212205)

作者简介: 蔡园园(1989—),女,硕士研究生,主要从事有机发光器件的研究。E-mail: CAIYUAN_1988@163.com

导师简介: 王义全(1964—),男,博士,研究员,主要从事微纳光电子器件与系统集成方面的研究。E-mail: yiquanwang@gmail.com

*通信联系人。E-mail: xchen4399@126.com

型微腔,被广泛应用于实现光子晶体光纤、发光二极管、全光开关及光子晶体激光器中^[11-13]。从理论上讲,利用光子晶体微腔,有望实现无阈值激光器^[14]。准晶是一种具有旋转对称性和长程指向性而没有平移周期性的特殊光子晶体结构,该结构获得完全带隙的折射率阈值低,如对于介质柱构成的8重准晶光子晶体(QPC),折射率大于1.25(即 $\epsilon > 1.55$)就会出现光子带隙,而聚合物的介电常数一般都比较低^[15-16],因此利用准晶光子晶体微腔来调节聚合物的自发辐射特性,更有利于低阈值电抽运激光器的实现。以聚合物 MEH-PPV 为增益介质设计了一种新型简单的电抽运8重准晶光子晶体微腔激光器,并研究了其工作特性。

2 结构设计和样品制备

制备的电抽运有机半导体光子晶体激光器采用三明治结构,如图1所示。两电极之间夹单层有机薄膜,氧化铟锡(ITO)为阳极,金属Al为阴极,金属Ag溅射在Al上作为封装保护层。实验中采用一种典型的电致发光材料 MEH-PPV{聚[2-甲氧基-5-(2-乙基己氧基)-1,4-苯乙炔]}作为增益介质。将 MEH-PPV 溶于氯仿与四氢呋喃的混合溶剂(体积比 3:1)中,利用 45 mm 的过滤嘴过滤,并通过涂膜机均匀旋涂于 ITO 玻璃上,随后利用磁控溅射在有机薄膜上制备阴极。在实验中,为了降低 ITO 玻璃表面的粗糙度,避免器件短路,需要在 ITO 与聚合物薄膜之间旋涂一层 PEDOT:PSS,可作为界面空穴注入层,以降低起亮电压、提高发光效率并延长使用寿命。图1所示的有机半导体激光器中聚合物膜厚度由台阶仪测量,约为 180~220 nm,折射率为 1.77^[17],发光面积为 2 mm×2 mm。

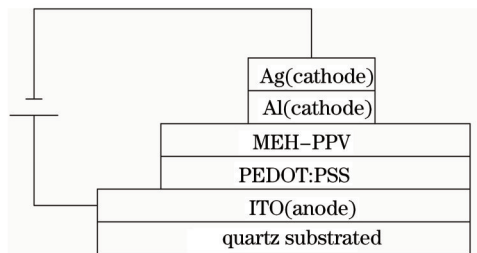


图1 有机发光器件的装置示意图

Fig.1 Schematic diagram of organic light-emitting device

图2为在室温下利用光纤光谱仪测得聚合物 MEH-PPV 的电致发光(EL)谱和采用分光光度计测到的对应吸收谱。从图可见,MEH-PPV 的电致发光区在 530~700 nm,半峰全宽约为 100 nm,其吸收峰与发射峰之间存在较大斯托克斯位移,因此该材料对光辐射的自吸收很小,有利于降低工作阈值。

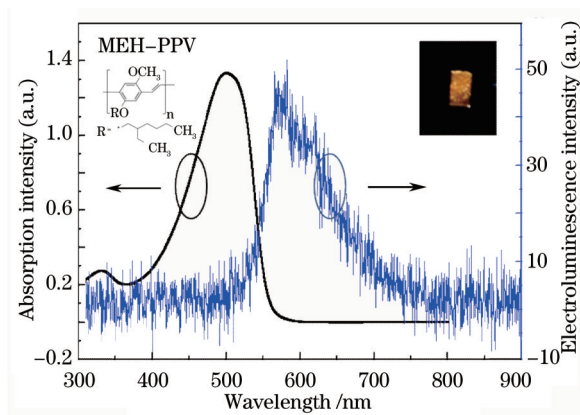


图2 MEH-PPV 的电致发光谱(起亮电压 14 V)和对应吸收谱。

(图中左上插图 为 MEH-PPV 化学结构式,右上图为完整有机薄膜电致发光照片)

Fig.2 Electroluminescent spectrum of MEH-PPV film with a turn-on voltage of 14 V and the corresponding absorption spectrum.

(The left inset is chemical structure of MEH-PPV, and right inset is the EL photo of MEH-PPV without a PC microcavity)

根据有机材料的发光特性,设计优化器件结构,提出采用光子晶体实现对光束的有效调控,进而获得发光信号的定向发射。计算光子晶体特性所采用的数值模拟方法是基于时域有限差分原理(FDTD)的 MEEP 软

件。该软件是麻省理工学院开发的免费软件包,可用于模拟研究光子晶体的透射谱、光子带隙和模场分布等。由于有机共轭聚合物 MEH-PPV 折射率较低,很难在周期光子晶体中获得完全带隙结构,因此尝试在准晶结构中获得高 Q 值微腔。在模拟优化中,研究了不同准晶对称性(8, 10, 12 重)、平板厚度、晶格常数、空气孔径以及不同缺陷结构对光子带隙、局域模、态密度的影响,最终确定了含有 9 孔缺陷的 8 重准晶光子晶体平板微腔为最优结构,其中晶格常数 $a=270$ nm,空气柱半径 $r=65$ nm,平板厚度 $h=200$ nm。计算中,设定 TE 模连续高斯光束作为入射光源,模拟得到通过光子晶体微腔后的对应透射谱(如图 3 所示),图中光子带隙位置位于 565~645 nm,缺陷模位于 597 nm,这与有机 MEH-PPV 的电致发光谱完美匹配。将对应中心波长 597 nm 的线光源(线长 0.5)置于光子晶体中心缺陷处,得到了缺陷模的场分布图,如图 3 所示。利用聚焦离子束(FIB)刻蚀系统,根据优化参数,在有机薄膜微区刻蚀 20 mm×20 mm 的准晶结构,对应微结构的扫描电镜(SEM)如图 4 所示,包含 516 个空气柱,其中 9 孔缺陷微腔直径小于 5 μ m。

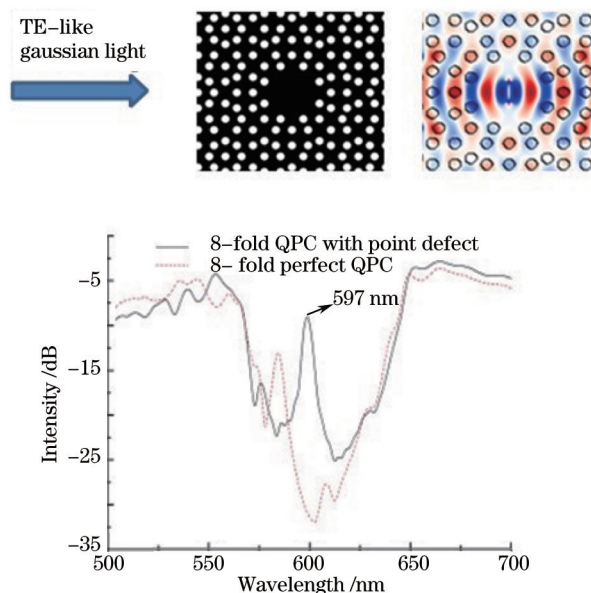


图 3 9 孔缺陷 8 重准晶光子晶体平板结构的透射光谱图以及局域模的场分布图。
(左上角为准晶光子晶体的几何结构, 右上角为 597 nm 出的缺陷模场分布)

Fig.3 Transmission spectra of 8-fold organic quasicrystal with (without) a microcavity.

(The top left is the schematic geometry of QPC and the top right is the field pattern of the localized defect mode at 597 nm)

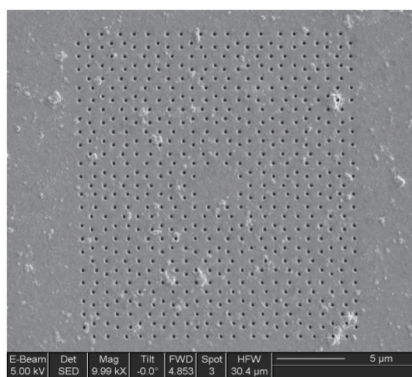


图 4 聚焦离子束刻蚀的准晶微腔的扫描电镜图

Fig.4 SEM picture of 8-fold symmetry QPC microcavity etched by FIB

3 测试结果与讨论

图 5 是测量有机半导体准晶光子晶体激光器输出特性的实验装置图,其中电致发光材料 MEH-PPV 位于阳极 ITO 和阴极 Al/Ag 之间。在实验中,采用海洋光纤光谱仪(型号 QE65)作为光谱接收器。QE65 系列的光谱仪分辨率可达 0.14~7.7 nm,其分辨率主要取决于所选择的光栅、入射狭缝和探测波长等因素。实验所用的 QE65

光纤光谱仪的分辨率为0.4 nm。在实验中,为解决微区面积小,发光强度弱和光束发散角小所造成的光谱测量困难,在实验中先采用光学显微镜进行发光定位,然后调整光纤光谱仪探头位置和角度以接收发光信号。图6为所制备的样品在不同电流下的出射光谱。由于准晶光子晶体微腔的局域性,以及由阴极(AI/Ag)和阳极(ITO)上下两个面的反射作用,大量光子被俘获收集并局域在准晶光子晶体微腔中,导致在形成微腔的光子晶体缺陷区域光子态密度很高,光在具有全反功能的阴极和透反射功能的阳极之间振荡,经过增益与选频,在波长 $\lambda = 606$ nm 处形成激射输出,半峰全宽为0.5 nm(受限于所用光谱仪的探测分辨率),此时微腔的品质因子高达1212。与同结构二维平板准晶光子晶体腔的模拟光谱图对比,激射峰位置红移了约10 nm。在理论计算中模拟研究了微腔边界,即附近一圈空气柱位置和大小对缺陷模的影响。在不改变其他参数的条件下,把离微腔最近的一圈空气柱往外移动0.05 a ,缺陷模式由原来的597 nm,移动到了608 nm。根据这一模拟结果,认为激射峰的偏移是在实际加工过程中由于缺陷微腔边界处空气柱位置的偏移,造成了10 nm左右的红移。

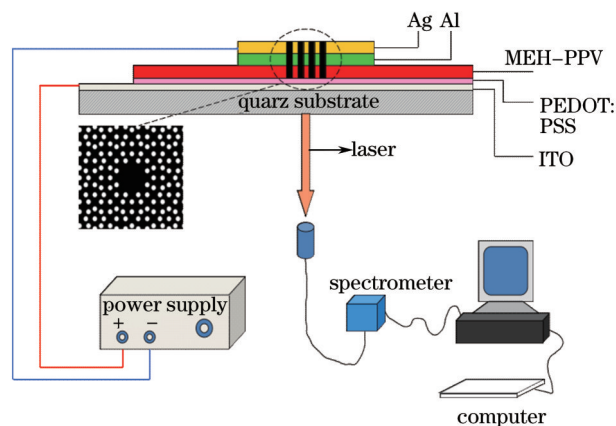


图5 电抽运有机准晶光子晶体激光器光谱测量。(左侧插图
为8重对称光子晶体微腔结构图)

Fig.5 Spectrum detection of electrically pumping organic quasicrystal laser. (The left inset is the schematic of an 8-fold symmetry photonic crystal microcavity)

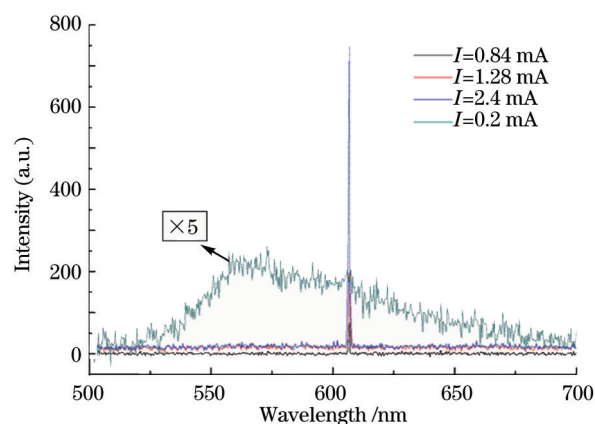


图6 不同电流下 MEH-PPV 准晶微腔激光器的激射光谱。
(底部为放大5倍后的电致发光光谱)

Fig.6 Lasing spectra of MEH-PPV QPC microcavity at different currents. (The spectrum of spontaneous emission is multiplied by a factor of 5)

另外,测量了发光器件输出光强和驱动电流的关系,如图7所示。当电流低于0.8 mA时,器件的发射光谱为一宽谱信号,发光较弱,其发光机制为放大的自发辐射。当所加电流达到阈值电流0.8 mA时,如图6所示,光谱线宽突然变窄,自发辐射模式被抑制,其能量转移至受激辐射模式,对应光强激增。阈值后,输出光强随电流增大而大幅线性增加,光谱形状完全由激射信号控制,显示为器件发生激射现象,输出激光。由此,该激光器发生激射的阈值电流为0.8 mA。

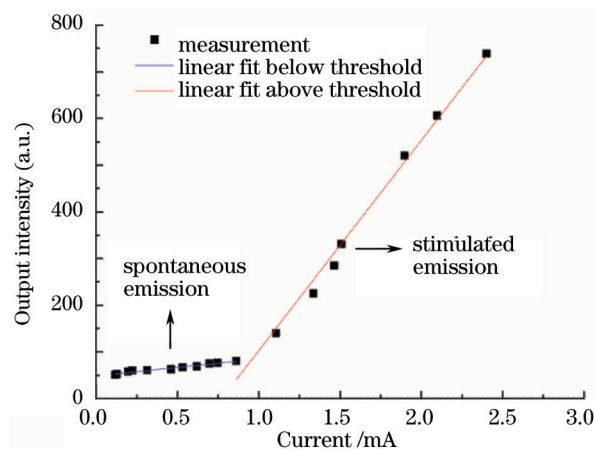


图7 器件输出光强随电流变化曲线

Fig.7 Measured light output-current characteristics of the device

4 结 论

利用聚合物 MEH-PPV 的良好发光特性和光子晶体对光的调制特性,设计制备了有机半导体二维平板的准晶光子晶体激光器,该激光器以 ITO 玻璃为基底,且作为电抽运阳极,用旋涂法在其上制备聚合物 MEH-PPV 薄膜做为增益介质,然后利用磁控溅射技术,在聚合物薄膜上制备铝阴极。利用微加工技术,在上述复合结构上加工二维平板准晶光子晶体。利用光子晶体的缺陷形成的微腔,以及上下表面电极作为反射膜共同构成激光器的谐振腔。所制备的 9 孔缺陷电抽运 8 重准晶光子晶体激光器,激射阈值为 0.8 mA,在 $\lambda = 606 \text{ nm}$ 处观察到激射现象,谱线的半峰全宽为 0.5 nm,接近光纤光谱仪的分辨率极限。

参 考 文 献:

- 1 Burrows P E, Gu G, Bulovic V, *et al.*. Achieving full-color organic light-emitting devices[J]. IEEE Transactions on Electron Devices, 1997, 44(8): 1188-1023.
- 2 Hosokawa C, Eida M, Matsuura M, *et al.*. Organic multi-color electroluminescence display with fine pixels[J]. Synth Met, 1997, 91(3): 3-7.
- 3 Tessler N. Lasers based on semiconducting organic material[J]. Adv Mater, 1999, 11(5): 363-370.
- 4 Baldo M A, Holmes R J, Forrest S R. Prospects for electrically pumped organic lasers[J]. Phys Rev B, 2002, 66(3): 035321.
- 5 McGehee M D, Heeger A J. Semiconductor (conjugated) polymers as materials for solid-state lasers[J]. Adv Mater, 2000, 12(22): 1655-1668.
- 6 Tessler N, Denton G J, Friend R H. Lasing from conjugated polymer microcavities[J]. Nature, 1996, 382(6593): 695-697.
- 7 Kozlov V G, Bulovic V, Burrows P E, *et al.*. Study of lasing action based on Förster energy transfer in optically pumped organic semiconductor thin films[J]. J Appl Phys, 1998, 84(8): 4096-4108.
- 8 Liu X, Py C, Tao Y, *et al.*. Low-threshold amplified spontaneous emission and laser emission in a polyfluorene derivative[J]. Appl Phys Lett, 2004, 84(15): 2727-2729.
- 9 Yang Y, Turnbull G A, Samuel I D W. Hybrid optoelectronics: A polymer laser pumped by a nitride light-emitting diode[J]. Appl Phys Lett, 2008, 92(16): 163306.
- 10 Yokoyama H. Physics and device applications of optical microcavities[J]. Science, 1992, 256(5053): 66-70.
- 11 Zhang Liang, Zhang Wei, Nie Qiuhua, *et al.*. Research progress of two-dimensional photonic crystal waveguides[J]. Laser & Optoelectronics Progress, 2013, 50(3): 030008.
章 亮, 张 巍, 聂秋华, 等. 二维光子晶体波导研究进展[J]. 激光与光电子学进展, 2013, 50(3): 030008.
- 12 Chai Lu, Hu Minglie, Fang Xiaohui, *et al.*. Advances in femtosecond laser technologies with photonic crystal fibers[J]. Chinese J Lasers, 2013, 40(1): 0101001.
柴 路, 胡明列, 方晓惠, 等. 光子晶体光纤飞秒激光技术研究进展[J]. 中国激光, 2013, 40(1): 0101001.
- 13 Liu Dan, Tong Aihong, Xiao Ming, *et al.*. Optimizing design for GaN-based light emitting diodes with photonic crystal Slab[J]. Laser & Optoelectronics Progress, 2014, 51(12): 122303.
刘 丹, 童爱红, 肖 明, 等. GaN 基光子晶体发光二极管的优化设计[J]. 激光与光电子学进展, 2014, 51(12): 122303.
- 14 Anderson S P, Fauchet P M. Ultra-low power modulators using MOS depletion in a high-Q SiO₂-clad silicon 2-D photonic crystal resonator[J]. Opt Express, 2010, 18(18): 19129-19140.
- 15 Bringuier Y R N, Claudon J, Böckler C, *et al.*. High Q whispering gallery modes in GaAs/AlAs pillar microcavities[J]. Opt Express, 2007, 15(25): 17291-17304.
- 16 Tanabe T, Notomi M, Kuramochi E, *et al.*. Trapping and delaying photons for one nanosecond in an ultrasmall high-Q photonic crystal nanocavity[J]. Nature Photon, 2007, 1(1): 49-52.
- 17 Wang Xiaoyang, Xu Yanmei, Zhang Chunping, *et al.*. Calculation of optical parameter of MEH-PPV film[J]. Acta Photonica Sinica, 2005, 34(5): 746-749.
王晓阳, 徐艳梅, 张春平, 等. MEH-PPV 薄膜的光学参数计算[J]. 光子学报, 2005, 34(5): 746-749.

栏目编辑: 张浩佳