

领结型纳米银金属阵列对氮化镓基发光二极管光提取效率的影响

汤桦^{1,2}, 李强^{1,2,3*}, 张启凡^{1,2}, 张明殷², 张盛楠², 胡朋², 王旭正², 张烨², 云峰^{2,3}

¹西安交通大学电子物理与器件教育部重点实验室, 陕西 西安 710049;

²西安交通大学电子科学与工程学院, 陕西 西安 710049;

³西安交通大学陕西省信息光子技术重点实验室, 陕西 西安 710049

摘要 为了提升氮化镓(GaN)基发光二极管(Light Emitting Diode, LED)的发光效率, 设计工艺简单且成本低廉的领结型纳米银金属阵列, 并将该结构集成于 GaN 基发光二极管的表面, 在不破坏外延结构的情况下通过激发局域表面等离子元效应有针对性地提升不同波段发光二极管的光提取效率。利用时域有限差分法系统地模拟计算不同尺寸的领结型纳米银金属阵列在不同入射波长下对 GaN 基发光二极管光提取效率的影响, 并通过实验进行验证。结果表明, 在中心波长分别为 370, 425, 525 nm 的 LED 的表面集成最优尺寸的领结型纳米银金属阵列, 其光致发光峰强度相比于无表面结构的 LED 分别提升 71.1%、148.2% 和 105.9%。

关键词 光学器件; 发光二极管; 局域表面等离子元; 纳米阵列结构; 光提取效率

中图分类号 O436

文献标志码 A

doi: 10.3788/AOS202141.2123001

Effect of Bow Tie Type Silver Metal Array Structure on Light Extraction Efficiency of GaN-Based Light Emitting Diodes

Tang Hua^{1,2}, Li Qiang^{1,2,3*}, Zhang Qifan^{1,2}, Zhang Mingyin², Zhang Shengnan²,
Hu Peng², Wang Xuzheng², Zhang Ye², Yun Feng^{2,3}

¹Key Laboratory of Physical Electronics and Devices for Ministry of Education, Xi'an Jiaotong University, Xi'an, Shaanxi 710049, China;

²School of Electronic Science and Engineering, Xi'an Jiaotong University, Xi'an, Shaanxi 710049, China;

³Shaanxi Provincial Key Laboratory of Photonics & Information Technology, Xi'an Jiaotong University, Xi'an, Shaanxi 710049, China

Abstract In order to improve the luminous efficiency of GaN-based light-emitting diodes (Light Emitting Diode, LED), a bow tie type silver metal array with a simple process and low cost is designed, and the structure is integrated on the surface of the GaN-based light-emitting diode. Without damaging the epitaxial structure, the light extraction efficiency of light-emitting diodes in different wavelength bands can be improved by exciting the local surface plasmon effect. The finite-difference time-domain method is used to systematically simulate and calculate the influence of bow tie type silver metal arrays on the light extraction efficiency of GaN based light-emitting diodes at different incident wavelengths. The results show that the photoluminescence peak intensity of the LED with the central wavelength of 370, 425 and 525 nm is increased by 71.1%, 148.2% and 105.9%, respectively, compared with that of the LED without surface structure.

Key words optical devices; light-emitting diode; local surface plasmon; nanoarray structure; light extraction efficiency

OCIS codes 230.3670; 220.4241; 250.5230; 240.6680

收稿日期: 2021-03-16; 修回日期: 2021-04-24; 录用日期: 2021-05-18

基金项目: 国家重点研发计划(2016YFB0400801)、中央高校基本科研业务费(xjj2017011)

通信作者: *liqiang2014@mail.xjtu.edu.cn

1 引言

作为 21 世纪绿色节能光源的代表,发光二极管 (Light Emitting Diode, LED) 因其具有发光效率高、体积小、寿命长、电压低以及环保等特点而被广泛地应用于各种场合^[1]。近年来,随着人们对半导体发光材料研究的不断深入,氮化镓 (GaN) 基 LED 受到了广泛的关注^[2-5],对于提升其发光效率的研究也是热点之一^[6]。目前,提高 LED 发光效率的常见方法有光子晶体^[7-8]、表面粗化^[9]和表面等离激元^[10-12]等。其中,光子晶体的结构设计和制作要求较高,表面粗化对器件的电学性能影响较大,而表面等离激元的方法相对可行有效,但仍存在损伤外延层以及制备成本高的问题。目前,关于表面等离激元提高 LED 发光效率的报导,主要集中于通过量子阱和表面等离激元的耦合来提升 LED 内的量子效率,从而提升 LED 的发光效率,而量子阱和表面等离激元的耦合要求量子阱与金属之间的距离小于表面等离激元共振的穿透深度。为了使金属与量子阱之间的距离足够近,相关报导中采用的制备方法有对 p 型 GaN 层进行刻蚀^[13]和通过二次外延在 p 型 GaN 层中打孔掩埋金属^[14],但这两种方法分别会导致 p 型 GaN 层遭到破坏和 p 型 GaN 层的质量降低,而且工艺复杂,成本较高。相比之下,利用尺寸可调的金属纳米颗粒来产生局域表面等离激元效应以提升 GaN 基 LED 光提取效率的方法工艺简单,成本低廉,能够在不破坏外延层和不影响器件电学性能的情况下有针对性地提升 LED 的光提取效率,从而提升 LED 的发光效率。

局域表面等离激元是指在有限的几何形状中产生的等离激元,由电场激发的局域表面等离激元在入射波长的范围内可以引起强烈的光散射并能够增强局域电场强度^[15-16]。局域表面等离激元对金属颗

粒的大小、形状和材料很敏感,使得其共振频率可以被有效调控^[17-18]。基于此,本文通过调控金属纳米颗粒的共振频率来实现对不同波段 LED 光提取效率的增强,系统地分析领结型纳米银金属阵列在不同入射波长下对 GaN 基 LED 光提取效率的影响,为在不破坏外延结构和不影响器件电学性能的情况下低成本提升 GaN 基 LED 的发光效率提供了可借鉴的方法。

本文设计一种由三角形纳米银颗粒 (Ag NP) 组成的领结型阵列结构,用以提高 GaN 基 LED 的光提取效率。首先,通过时域有限差分 (Finite-Difference Time-Domain, FDTD) 法模拟计算不同尺寸的领结型纳米银金属阵列对不同波段 LED 光提取效率的影响。然后,基于模拟计算的最优结果,分别在不同波段的 GaN 基外延片表面制备领结型纳米银金属阵列。最后,利用光致发光光谱表征有领结型纳米银金属阵列的光致发光特性,将其与表面无结构的样品进行对比,结合模拟计算结果分析该结构对不同波段 GaN 基 LED 光提取效率的作用。

2 实验与仿真

2.1 样品的制备

实验的工艺流程如图 1 所示,其中 PS 为聚苯乙烯纳米球。首先通过自组装方式^[19]在衬底上铺设单层聚苯乙烯纳米球模板。在铺设之前对衬底进行清洗,并将清洗后的衬底通过氧等离子体进行亲水性处理。使用体积比为 1:1 的无水乙醇对聚苯乙烯纳米球溶液进行稀释,将稀释后的聚苯乙烯纳米球溶液通过微量进样器缓慢滴加到盛有水的培养皿中,并加入十二烷基硫酸钠溶液使其形成紧凑的聚苯乙烯纳米球单层膜。使用亲水处理过的衬底缓慢从培养皿中将聚苯乙烯纳米球单层膜捞起,自然晾

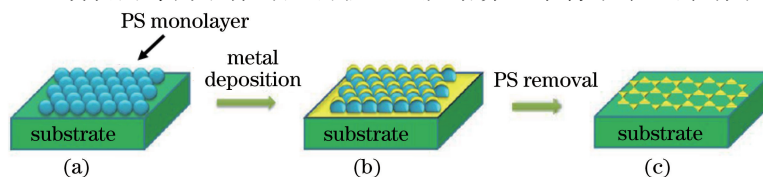


图 1 领结型纳米银金属阵列的制备流程。(a)在衬底上通过自组织方法铺设聚苯乙烯纳米球模板;

(b)在模板上通过蒸镀方法生长银膜;(c)将模板通过甲苯浸泡超声去除后,留下规整的领结型纳米银金属阵列

Fig. 1 Preparation process of bow tie type nanosilver metal array. (a) Polystyrene nanosphere templates are laid on substrate by self-organizing method; (b) silver film is grown on template by evaporation; (c) template is removed by toluene immersion and ultrasound, leaving neat bow tie type nanosilver metal array

干后得到铺设聚苯乙烯纳米球单层膜的样品。然后将样品固定在蒸发室的支架上并进行真空热电阻蒸镀,蒸镀靶材为银,蒸发室的真空度达到 2×10^{-3} Pa 以下,蒸镀电流为 107 A,镀膜厚度为 30~70 nm。最后将蒸镀后的样品取出并置于盛有甲苯的培养皿中,超声处理 2 min 后再使其自然晾干,最终得到表面有领结型纳米银金属阵列的样品。

2.2 FDTD 仿真模型的建立

为了研究领结型纳米银颗粒的尺寸与入射光波长对颗粒的局域表面等离子元特性的影响,本文通过 FDTD Solutions 软件对不同尺寸的领结型纳米银颗粒在不同入射波长下的消光特性和电场分布进

行了三维仿真。领结型纳米银颗粒消光特性的仿真模型如图 2 所示,模拟过程中采用全场散射场(Total-Field Scatter-Field, TFSF)光源和完美匹配层(Perfectly Matched Layer, PML)边界,其中 \mathbf{K} 和 \mathbf{E} 分别为光源入射方向和电场方向。为了得到更精确的结果,在领结型纳米银颗粒的周围设置精度为 1 nm 的网格。当对领结型纳米银颗粒的消光特性进行模拟时,光源从空气端入射,在光源的内部和外部分别设置两个三维监视器,如图 2(a)所示;当对领结型纳米银颗粒的电场分布特性进行模拟时,光源从衬底底端入射,在颗粒的 $x-z$ 平面设置一个二维监视器,如图 2(b)所示。

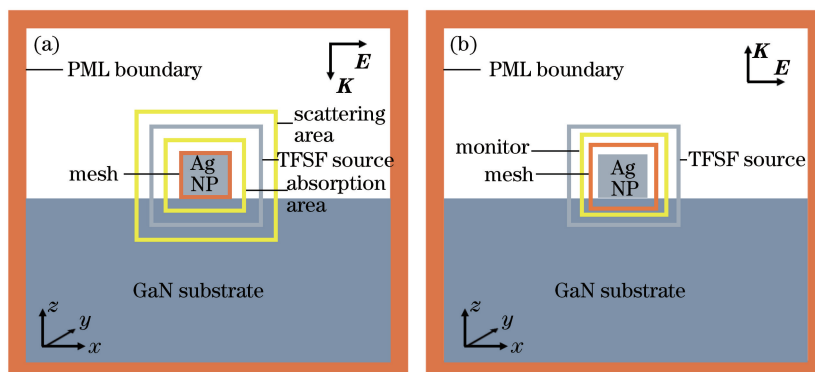


图 2 领结型纳米银颗粒的仿真模型。(a)领结型纳米银颗粒的消光特性仿真模型;(b)领结型纳米银颗粒的电场分布仿真模型

Fig. 2 Simulation model of bow tie type silver nanoparticles. (a) Simulation model of extinction characteristics of bow tie type silver nanoparticles; (b) simulation model of electric field distribution of bow tie type silver nanoparticles

3 结果与讨论

实验制备的聚苯乙烯纳米球模板和领结型纳米银金属阵列的扫描电子显微镜(Scanning

Electron Microscope, SEM)图如图 3 所示。从图 3 可以看到,聚苯乙烯纳米球模板中的纳米球均匀分布且排列紧密,通过该模板制备出来的纳米结构形貌规整。

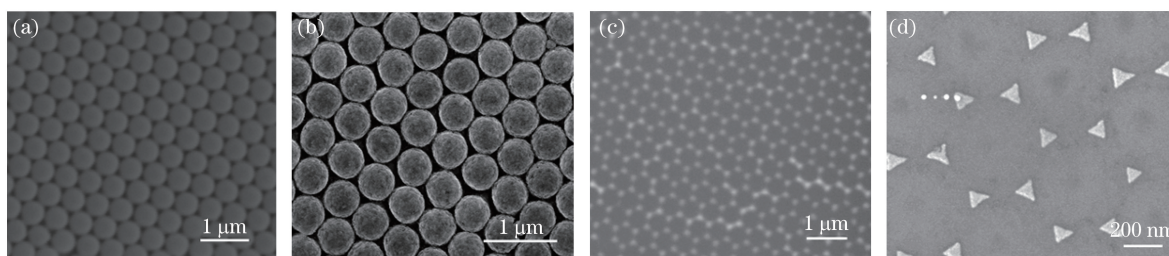


图 3 聚苯乙烯纳米球模板及领结型纳米银金属阵列的 SEM 图。(a)直径为 500 nm 的单层聚苯乙烯纳米球模板的 SEM 图;(b)蒸镀 30 nm 厚的银后聚苯乙烯纳米球模板的 SEM 图;(c)去除聚苯乙烯纳米球模板后领结型纳米银金属阵列的 SEM 图;(d)领结型纳米银金属阵列的局部放大 SEM 图

Fig. 3 SEM images of polystyrene nanosphere template and bow tie type silver metal array. (a) SEM image of monolayer polystyrene nanospheres with diameter of 500 nm; (b) SEM image of polystyrene nanospheres after evaporation of silver with thickness of 30 nm; (c) SEM image of bow tie type silver metal array after removing polystyrene nanosphere template; (d) local magnified SEM image of bow tie type silver metal array

3.1 领结型纳米银颗粒的尺寸对共振频率的影响

为了探究领结型纳米银颗粒的尺寸对局域表面

等离子元特性的影响,本文对不同尺寸的领结型纳米银颗粒的消光光谱进行了仿真计算,结果如图 4

所示。从图 4 可以看到,当颗粒厚度(H)不变、颗粒边长(L)增加时,消光峰发生明显红移;当颗粒边长不变、颗粒厚度增加时,消光峰发生轻微蓝移;当颗粒边长不变、厚度从 40 nm 增大到 70 nm 时,消光峰仅蓝移了约 17 nm。综上可得,相比于颗粒厚度,领结型纳米银颗粒的共振频率受边长的影响较大。当领结型纳米银颗粒的边长较长时,有利于其与较

长波长的入射光发生耦合;反之,当领结型纳米银颗粒的尺寸较小时,有利于其与短波长的入射光发生耦合。当领结型纳米银颗粒的边长从 30 nm 逐渐增大到 120 nm 时,其共振频率从紫外波段蓝移到绿光波段,因此可以通过调节领结型纳米银颗粒的边长与厚度来调制其共振频率,使其匹配不同波段 LED 的发光波长。

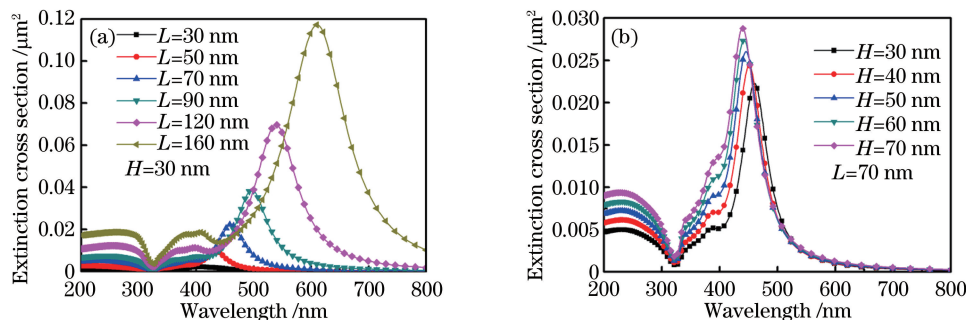


图 4 不同尺寸的领结型纳米银颗粒的消光光谱。(a)不同边长的领结型纳米银颗粒的消光光谱;
(b)不同厚度的领结型纳米银颗粒的消光光谱

Fig. 4 Extinction spectra of bow tie type silver nanoparticles with different sizes. (a) Extinction spectra of bow tie type silver nanoparticles with different side lengths; (b) extinction spectra of bow tie type silver nanoparticles with different thicknesses

3.2 介电环境对局域表面等离子共振特性的影响

为了进一步探究介电环境对领结型纳米银颗粒的局域表面等离子共振特性的影响,本文分别在不添加衬底和添加 GaN 衬底的情况下对领结型纳米银颗粒进行模拟,设置领结型纳米银颗粒的边长为 120 nm,厚度为 70 nm。在未添加衬底和添加 GaN 衬底的情况下,领结型纳米银颗粒的消光光谱和电场分布如图 5 所示,其中电场分布图经过对数处理。从图 5(a)可以看到,当领结型纳米银颗粒处于空气介质

时,消光峰位于 500 nm 波长处,电场在领结型纳米银颗粒的上下表面均匀分布。从图 5(b)可以看到,当模型添加 GaN 衬底后,领结型纳米银颗粒的消光光谱分别在波长为 454 nm 和 791 nm 处有消光峰。454 nm 波长处的消光峰对应的电场主要集中在领结型纳米银颗粒的上表面,将该模式称为模式 I;791 nm 波长处的消光峰对应的电场主要集中在领结型纳米银颗粒的下表面,将该模式称为模式 II。从图 5 可以看到,衬底的引入使得领结型纳米银颗粒的局域表面

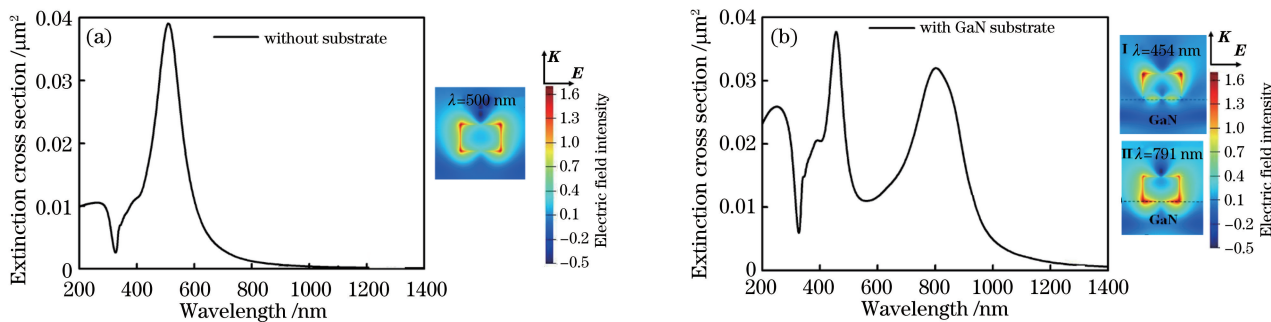


图 5 领结型纳米银颗粒的消光光谱和电场分布。(a)未添加衬底的领结型纳米银颗粒的消光光谱,及消光峰对应的领结型纳米银颗粒在 $x-z$ 平面的电场分布;(b)添加 GaN 衬底的领结型纳米银颗粒的消光光谱,及两处消光峰对应的领结型纳米银颗粒在 $x-z$ 平面的电场分布

Fig. 5 Extinction spectrum and electric field distribution of bow tie type silver nanoparticles. (a) Extinction spectrum of bow tie type silver nanoparticles without substrate, and electric field distribution in $x-z$ plane corresponding to extinction peak; (b) extinction spectrum of bow tie type silver nanoparticles with GaN substrate, and electric field distribution of two extinction peaks corresponding to bow tie type silver nanoparticles in $x-z$ plane

等离激元的共振特性发生明显变化。

单个金属纳米颗粒的等离激元模式可以分为明模和暗模,其中明模具有有限的偶极矩,而且可以与光耦合并能够被入射光有效激发,但暗模不能有效地耦合光,较难被激发^[20-21]。当金属纳米颗粒被放置在介电衬底上时,将产生明偶极子模式与暗四极子模式叠加的杂化模式^[22]。因此,当未添加衬底时,领结型纳米银颗粒的消光光谱只有一个对应明偶极子模式的消光峰,当入射光波长为消光峰的中心波长时,领结型纳米银颗粒的近场分布表现出电场在颗粒上、下两端均匀分布的明偶极子模式,如

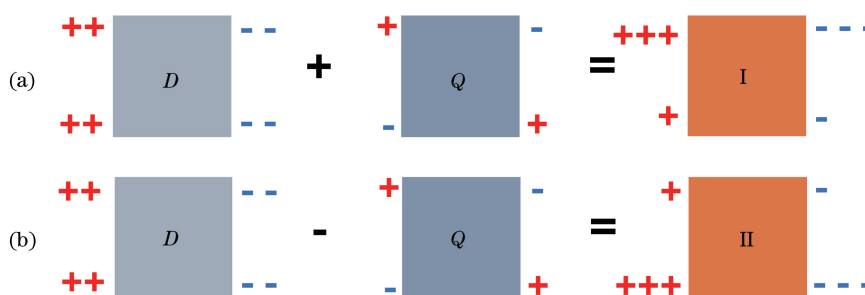


图 6 局域表面等离激元的杂化模式。(a)偶极子模式和四极子模式耦合后电荷主要集中在纳米颗粒的上表面；
(b)偶极子模式和四极子模式耦合后电荷主要集中在纳米颗粒的下表面

Fig. 6 Hybrid modes of local surface plasmons. (a) Charge mainly concentrates on upper surface of nanoparticles after coupling of dipole mode and quadrupole mode; (b) charge mainly concentrates on lower surface of nanoparticles after coupling dipole mode and quadrupole mode

3.3 领结型纳米银金属阵列对 LED 光提取效率的影响

为了探究领结型纳米银金属阵列的尺寸和入射光波长对局域表面等离激元共振模式以及 LED 光提取效率的影响,本文对不同尺寸的领结型纳米银颗粒在近紫外(370 nm)、蓝光(425 nm)和绿光(525 nm)波段的近场分布进行了仿真。为了与实验结果更好地进行比对与匹配,在领结型纳米银颗粒尺寸的选择上,模型采用边长 L 分别为 30, 120, 160 nm 的领结型纳米银颗粒,对应实验中使用直径 d 分别为 200, 500, 900 nm 的聚苯乙烯小球模板制备的领结型纳米银金属阵列,颗粒厚度 H 分别采用 30, 50, 70 nm。

不同尺寸的领结型纳米银颗粒在 370 nm 波段下的电场分布如图 7 所示。从图 7 可以看到,领结型纳米银颗粒的下表面均无电场,这种情况下电荷密度主要集中在领结型纳米银颗粒的上表面和侧面,下表面电荷湮灭;在近紫外波段,边长 $L =$

图 5(a) 所示;当有衬底介入时,纳米颗粒周围的介电环境的对称性被破坏,在明偶极子模式与暗四极子模式的叠加下,形成了一种电场主要集中在纳米颗粒空气端的杂化模式 I 和一种电场主要集中在纳米颗粒衬底端的杂化模式 II,如图 5(b) 所示。杂化模式 I 下偶极子模式(D)与四极子模式(Q)的耦合方式如图 6(a) 所示。从图 6(a) 可以看到,电荷密度主要集中在领结型纳米银颗粒的上表面。杂化模式 II 下偶极子模式与四极子模式的耦合方式如图 6(b) 所示。从图 6(b) 可以看到,电荷密度主要集中在领结型纳米银颗粒的衬底端。

30 nm 的领结型纳米银颗粒的近场增强效果较明显,颗粒在水平方向上局域表面等离激元共振的穿透深度较大;随着纳米颗粒厚度的增加,颗粒表面的电场也有增强趋势。不同尺寸的领结型纳米银颗粒在 425 nm 波段下的电场分布如图 8 所示。从图 8 可以看到,领结型纳米银颗粒的电场主要集中在领结型纳米银颗粒的上表面,下表面的电场强度很弱,呈现出图 6(a) 的杂化模式;在蓝光波段,边长 $L = 30$ nm 的领结型银纳米颗粒的局域表面等离激元共振在水平方向上的穿透深度较大,且随着颗粒厚度的增加,局域电场强度和穿透深度均有上升趋势。不同尺寸的领结型纳米银颗粒在 525 nm 波段下的电场分布如图 9 所示。从图 9 可以看到,电场主要集中在领结型纳米银颗粒的上表面;相比于近紫外和蓝光波段,领结型纳米银颗粒下表面的电场强度在绿光波段明显增强;当纳米颗粒的边长 $L = 120$ nm 和厚度 $H = 70$ nm 时,呈现出四极子模式与较强的偶极子模式耦合的杂化模式。

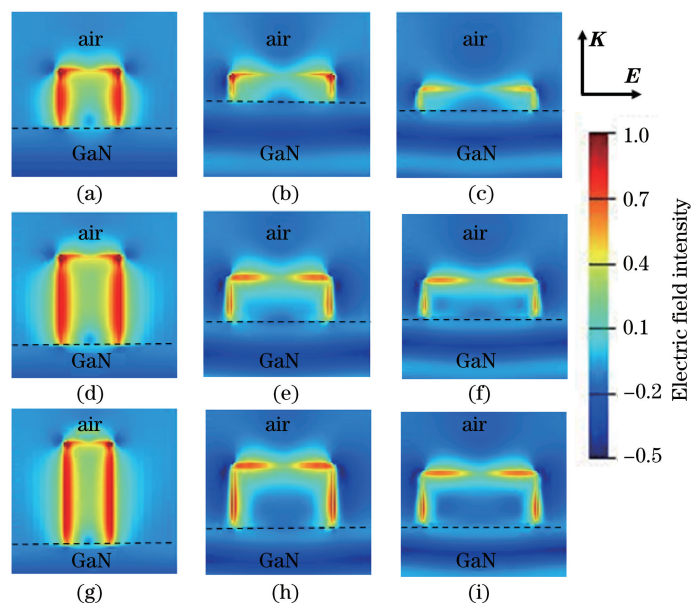


图 7 不同尺寸的领结型纳米银颗粒在 370 nm 波段下的电场分布。(a) $L=30\text{ nm}$, $H=30\text{ nm}$; (b) $L=120\text{ nm}$, $H=30\text{ nm}$; (c) $L=160\text{ nm}$, $H=30\text{ nm}$; (d) $L=30\text{ nm}$, $H=50\text{ nm}$; (e) $L=120\text{ nm}$, $H=50\text{ nm}$; (f) $L=160\text{ nm}$, $H=50\text{ nm}$; (g) $L=30\text{ nm}$, $H=70\text{ nm}$; (h) $L=120\text{ nm}$, $H=70\text{ nm}$; (i) $L=160\text{ nm}$, $H=70\text{ nm}$

Fig. 7 Electric field distribution of bow tie type silver nanoparticles with different sizes in 370 nm band. (a) $L=30\text{ nm}$, $H=30\text{ nm}$; (b) $L=120\text{ nm}$, $H=30\text{ nm}$; (c) $L=160\text{ nm}$, $H=30\text{ nm}$; (d) $L=30\text{ nm}$, $H=50\text{ nm}$; (e) $L=120\text{ nm}$, $H=50\text{ nm}$; (f) $L=160\text{ nm}$, $H=50\text{ nm}$; (g) $L=30\text{ nm}$, $H=70\text{ nm}$; (h) $L=120\text{ nm}$, $H=70\text{ nm}$; (i) $L=160\text{ nm}$, $H=70\text{ nm}$

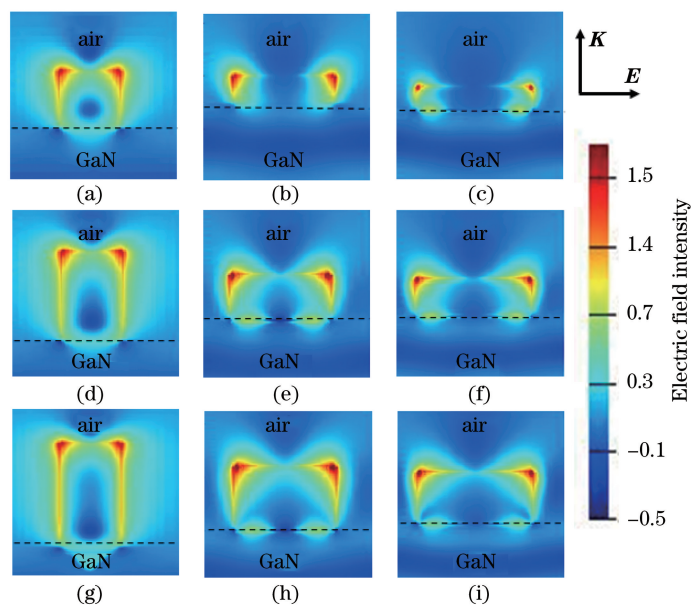


图 8 不同尺寸的领结型纳米银颗粒在 425 nm 波段下的电场分布。(a) $L=30\text{ nm}$, $H=30\text{ nm}$; (b) $L=120\text{ nm}$, $H=30\text{ nm}$; (c) $L=160\text{ nm}$, $H=30\text{ nm}$; (d) $L=30\text{ nm}$, $H=50\text{ nm}$; (e) $L=120\text{ nm}$, $H=50\text{ nm}$; (f) $L=160\text{ nm}$, $H=50\text{ nm}$; (g) $L=30\text{ nm}$, $H=70\text{ nm}$; (h) $L=120\text{ nm}$, $H=70\text{ nm}$; (i) $L=160\text{ nm}$, $H=70\text{ nm}$

Fig. 8 Electric field distribution of bow tie type silver nanoparticles with different sizes in 425 nm band. (a) $L=30\text{ nm}$, $H=30\text{ nm}$; (b) $L=120\text{ nm}$, $H=30\text{ nm}$; (c) $L=160\text{ nm}$, $H=30\text{ nm}$; (d) $L=30\text{ nm}$, $H=50\text{ nm}$; (e) $L=120\text{ nm}$, $H=50\text{ nm}$; (f) $L=160\text{ nm}$, $H=50\text{ nm}$; (g) $L=30\text{ nm}$, $H=70\text{ nm}$; (h) $L=120\text{ nm}$, $H=70\text{ nm}$; (i) $L=160\text{ nm}$, $H=70\text{ nm}$

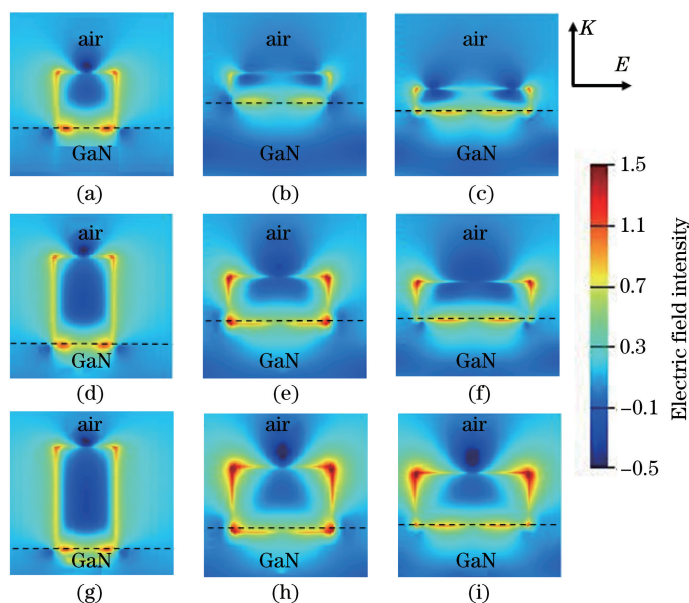


图 9 不同尺寸的领结型纳米银颗粒在 525 nm 波段下的电场分布。(a) $L=30\text{ nm}$, $H=30\text{ nm}$; (b) $L=120\text{ nm}$, $H=30\text{ nm}$; (c) $L=160\text{ nm}$, $H=30\text{ nm}$; (d) $L=30\text{ nm}$, $H=50\text{ nm}$; (e) $L=120\text{ nm}$, $H=50\text{ nm}$; (f) $L=160\text{ nm}$, $H=50\text{ nm}$; (g) $L=30\text{ nm}$, $H=70\text{ nm}$; (h) $L=120\text{ nm}$, $H=70\text{ nm}$; (i) $L=160\text{ nm}$, $H=70\text{ nm}$

Fig. 9 Electric field distribution of bow tie type silver nanoparticles with different sizes in 525 nm band. (a) $L=30\text{ nm}$, $H=30\text{ nm}$; (b) $L=120\text{ nm}$, $H=30\text{ nm}$; (c) $L=160\text{ nm}$, $H=30\text{ nm}$; (d) $L=30\text{ nm}$, $H=50\text{ nm}$; (e) $L=120\text{ nm}$, $H=50\text{ nm}$; (f) $L=160\text{ nm}$, $H=50\text{ nm}$; (g) $L=30\text{ nm}$, $H=70\text{ nm}$; (h) $L=120\text{ nm}$, $H=70\text{ nm}$; (i) $L=160\text{ nm}$, $H=70\text{ nm}$

结合仿真结果,为了验证不同尺寸的领结型纳米银金属阵列对 LED 光提取效率的实际增强效果,在发光峰中心波长分别为 370,425,525 nm 的不同外延片上制备了不同尺寸的领结型纳米银金属阵列,并对其光致发光(Photoluminescence, PL)光谱进行了测试,结果如图 10 和图 11 所示。

在近紫外、蓝光和绿光波段,领结型纳米银金属阵列对外延片光提取效率的增强效果会受到领结型纳米银颗粒尺寸的影响。从图 10(a)可以看到,在近紫外波段,当使用直径(d)为 200 nm 的聚

苯乙烯纳米球模板制备领结型纳米银金属阵列时,外延片的 PL 发光峰强度提升了约 64.3%。从图 10(b)可以看到,在蓝光波段,当使用直径为 200 nm 的聚苯乙烯纳米球模板制备时,外延片的 PL 发光峰强度相比于无表面结构的外延片增强了约 128.2%。从图 10(c)可以看到,在绿光波段,当使用直径为 500 nm 的聚苯乙烯纳米球模板制备时,外延片的 PL 发光峰强度相比于无表面结构的外延片增强了约 70.7%。从图 10 可以看到,当领结型纳米银颗粒的厚度从 30 nm 增加到

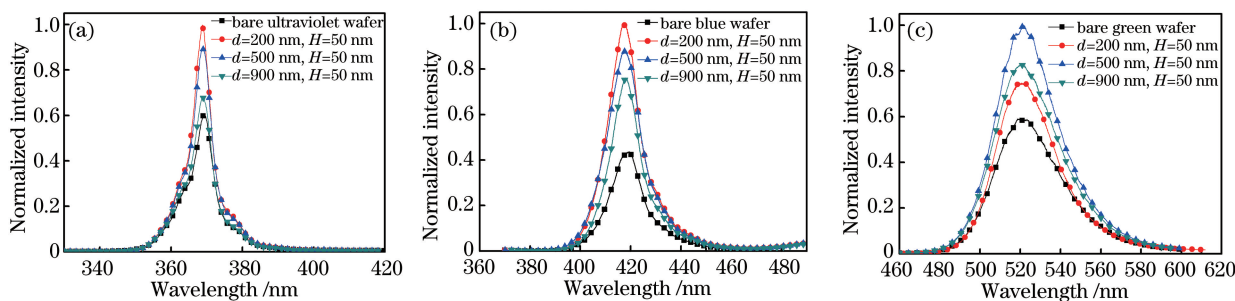


图 10 不同直径的领结型纳米银金属阵列在不同波段下的光致发光光谱。(a) 近紫外波段(370 nm); (b) 蓝光波段(425 nm); (c) 绿光波段(525 nm)

Fig. 10 Photoluminescence spectra of bow tie type silver metal arrays in different bands. (a) Near ultraviolet band (370 nm); (b) blue band (425 nm); (c) green light band (525 nm)

70 nm 时,各个波段的光提取效率均有上升趋势。从图 11(a) 可以看到,在近紫外波段,当 $d = 200$ nm 和 $H = 70$ nm 时,外延片的 PL 发光峰强度相比于无表面结构的外延片约提升 71.1%。从图 11(b) 可以看到,在蓝光波段,当 $d = 200$ nm 和

$H = 70$ nm 时,外延片的 PL 发光峰强度相比于无表面结构的外延片约提升 148.2%。从图 11(c) 可以看到,在绿光波段,当 $d = 500$ nm 和 $H = 70$ nm 时,外延片的 PL 发光峰强度相比于无表面结构的外延片约提升 105.9%。

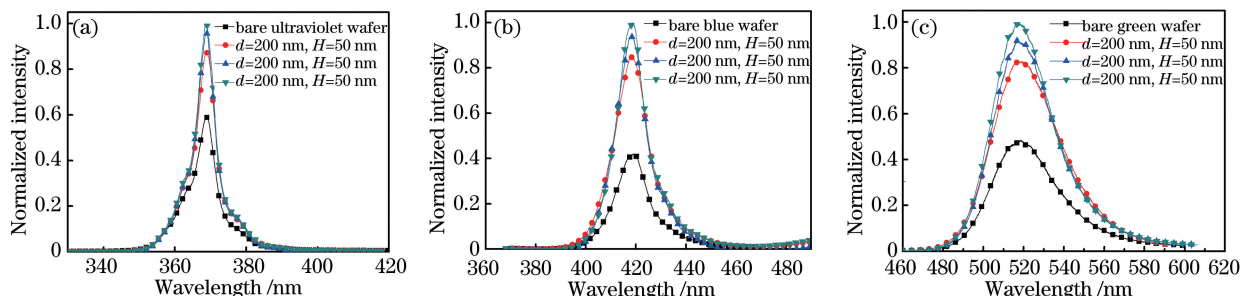


图 11 不同厚度的领结型纳米银颗粒在不同波段下的光致发光光谱。(a)近紫外波段(370 nm); (b)蓝光波段(425 nm);(c)绿光波段(525 nm)

Fig. 11 Photoluminescence spectra of bow tie silver nanoparticles with different thicknesses in different bands. (a) Near ultraviolet band (370 nm); (b) blue band (425 nm); (c) green light band (525 nm)

3.4 实验结果与仿真结果的分析

实验测试结果和仿真结果并未完美结合,这是因为在制备过程中由聚苯乙烯纳米球模板本身的缺陷导致领结型纳米银金属阵列中颗粒之间的尺寸有一定的差异,而且产生了呈“哑铃”状的缺陷颗粒,如图 12 所示。本文对领结型纳米银颗粒和缺陷颗粒

进行了消光光谱的仿真,FDTD 仿真的模型如图 13 所示,计算得到的消光光谱如图 14 所示。从图 14 可以看到,当颗粒产生缺陷时,颗粒的消光光谱发生了明显的红移。受到聚苯乙烯纳米球模板自身的限制,当大面积制备领结型纳米银金属阵列时,不可避免地使阵列中领结型纳米银颗粒之间的尺寸存

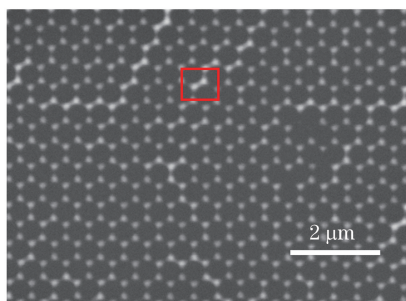


图 12 有缺陷的领结型纳米银金属阵列的 SEM 图
Fig. 12 SEM image of defective bow tie type silver metal array

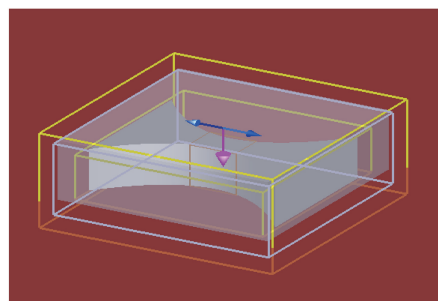


图 13 缺陷颗粒的 FDTD 仿真模型
Fig. 13 FDTD simulation model of defect particle

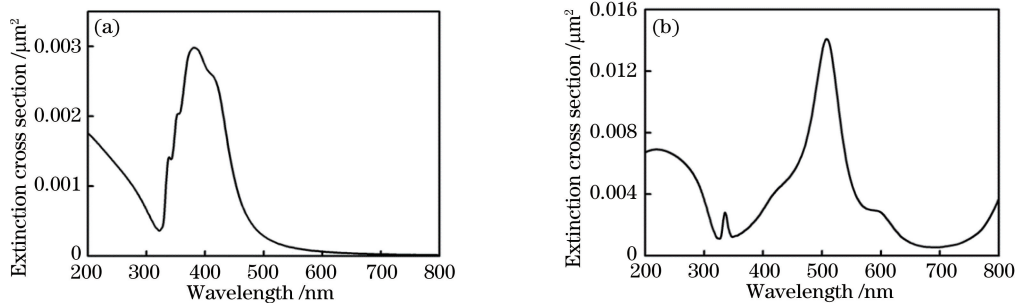


图 14 领结型纳米银颗粒和缺陷颗粒的消光光谱。(a)领结型纳米银颗粒;(b)缺陷颗粒

Fig. 14 Extinction spectrum of bow tie type silver nanoparticles and defect particles. (a) Bow tie type silver metal array; (b) defective particles

在偏差而产生缺陷颗粒,使得金属阵列的共振频率发生了改变,整体发生红移,与理想情况的仿真结果有一定的偏差。

3.5 领结型纳米银金属阵列对 LED 电学性能的影响

为了研究领结型纳米银金属阵列对 LED 器件电学性能的影响,对集成不同尺寸的领结型纳米银金属阵列的 LED 的电学性能进行了测试,结果如图 15~17 所示。从图 15~17 可以看到,添加领结型纳米银金属阵列的 LED 的 I-V 曲线相比于添加前无明显变化,说明添加领结型纳米银金属阵列不会导致 LED 的电学性能恶化。

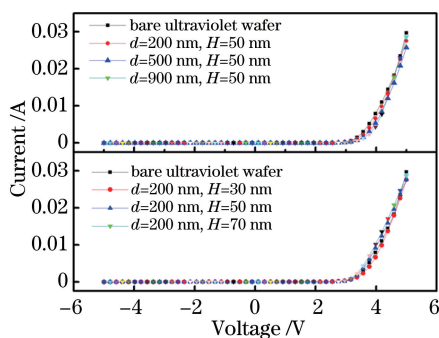


图 15 集成不同尺寸的领结型纳米银金属阵列的 LED 在 370 nm 的 I-V 曲线。(a) $H=50$ nm, d 分别为 200, 500, 900 nm; (b) $d=200$ nm, H 分别为 30, 50, 70 nm

Fig. 15 I-V curves of LEDs integrating bow tie type silver metal arrays of different sizes at 370 nm. (a) $H=50$ nm, d is 200, 500, 900 nm, respectively; (b) $d=200$ nm, H is 30, 50, 70 nm, respectively

4 结 论

本文系统地研究领结型纳米银金属阵列对不同波段的 GaN 基 LED 的光提取作用。通过 FDTD 软件来模拟结构的消光特性和电场分布特性,研究结构的尺寸及入射光波长对局域表面等离子共振模式和局域电场增强的影响,得到 GaN 基衬底上的领结型纳米银颗粒均呈偶极子模式与四极子模式耦合的局域表面等离子共振模式,并优化得到不同波段的最优结构。其中在近紫外波段(370 nm),领结型纳米银颗粒的最优结构边长 $L=30$ nm,厚度 $H=70$ nm;在蓝光波段(425 nm),最优结构的边长 $L=30$ nm,厚度 $H=70$ nm;在绿光波段(525 nm),最优结构的边长 $L=160$ nm,厚度 $H=70$ nm。

基于模拟结果,采用真空热电阻蒸镀的方法制

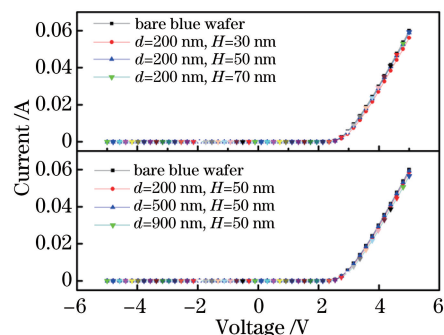


图 16 集成不同尺寸的领结型纳米银金属阵列的 LED 在 425 nm 的 I-V 曲线。(a) $d=200$ nm, H 分别为 30, 50, 70 nm; (b) $H=50$ nm, d 分别为 200, 500, 900 nm

Fig. 16 I-V curves of LEDs integrating bow tie type silver metal array of different sizes at 425 nm. (a) $d=200$ nm, H is 30, 50, 70 nm, respectively; (b) $H=50$ nm, d is 200, 500, 900 nm, respectively

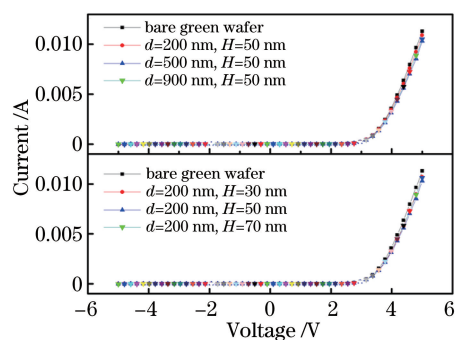


图 17 集成不同尺寸的领结型纳米银金属阵列的 LED 在 525 nm 的 I-V 曲线。(a) $H=50$ nm, d 分别为 200, 500, 900 nm; (b) $d=500$ nm, H 分别为 30, 50, 70 nm

Fig. 17 I-V curves of LEDs integrating bowtie nanosilver metal arrays of different sizes at 525 nm. (a) $H=50$ nm, d is 200, 500, 900 nm, respectively; (b) $d=500$ nm, H is 30, 50, 70 nm, respectively

作集成有最优结构的近紫外、蓝光和绿光外延片样品,并与表面无结构的样品进行光致发光光谱对比测试,结果表明在近紫外、蓝光和绿光波段,发光峰强度分别提升了 71.1%、148.2% 和 105.9%,且电学性能未受到影响。本文工作表明,不同尺寸的领结型纳米银金属阵列能够有效增强近紫外、蓝光和绿光波段的 LED 的光提取效率,为有针对性地增强不同波段的 GaN 基发光二极管的发光效率提供了一种工艺简单、成本低廉且不影响器件外延结构和电学性能的处理手段。

参 考 文 献

- [1] Zhmakin A I. Enhancement of light extraction from light emitting diodes[J]. *Physics Reports*, 2011, 498(4/5): 189-241.
- [2] Ou S L, Wu D S, Liu S P, et al. Pulsed laser deposition of ITO/AZO transparent contact layers for GaN LED applications[J]. *Optics Express*, 2011, 19(17): 16244-16251.
- [3] Hu L, Zhang L Q, Liu J P, et al. High power GaN-based blue lasers [J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2020, 47(7): 0701025.
胡磊, 张立群, 刘建平, 等. 高功率氮化镓基蓝光激光器[J]. *中国激光*, 2020, 47(7): 0701025.
- [4] Li Z L, Zuo R. Simulation of interfacial stress in sapphire-GaN heterogeneous film system [J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2020, 57(19): 193102.
李增林, 左然. 蓝宝石-氮化镓异质膜系统界面应力的模拟研究[J]. *激光与光电子学进展*, 2020, 57(19): 193102.
- [5] Huang H W, Kao C C, Chu J T, et al. Investigation of GaN LED with be-implanted Mg-doped GaN layer [J]. *Materials Science and Engineering: B*, 2004, 113(1): 19-23.
- [6] Orita K, Tamura S, Takizawa T, et al. High-extraction-efficiency blue light-emitting diode using extended-pitch photonic crystal[J]. *Japanese Journal of Applied Physics*, 2004, 43(8B): 5809-5813.
- [7] Chen X L, Kong F M, Li K, et al. Improvement of light extraction efficiency of GaN-based blue light-emitting diode by disorder photonic crystal[J]. *Acta Physica Sinica*, 2013, 62(1): 017805.
陈新莲, 孔凡敏, 李康, 等. 无序光子晶体提高 GaN 基蓝光发光二极管光提取效率的研究[J]. *物理学报*, 2013, 62(1): 017805.
- [8] McGroddy K, David A, Matioli E, et al. Directional emission control and increased light extraction in GaN photonic crystal light emitting diodes [J]. *Applied Physics Letters*, 2008, 93(10): 103502.
- [9] Fujii T, Gao Y, Sharma R, et al. Increase in the extraction efficiency of GaN-based light-emitting diodes via surface roughening [J]. *Applied Physics Letters*, 2004, 84(6): 855-857.
- [10] Gu X, Qiu T, Zhang W, et al. Light-emitting diodes enhanced by localized surface plasmon resonance[J]. *Nanoscale Research Letters*, 2011, 6(1): 199.
- [11] Zhang Z M, Li K, Kong F M, et al. Study on improving light emitting efficiency of LED by using silver nanodisk array[J]. *Acta Optica Sinica*, 2012, 32(4): 0423001.
张振明, 李康, 孔凡敏, 等. 采用银纳米圆盘阵列提高 LED 发光特性的研究[J]. *光学学报*, 2012, 32(4): 0423001.
- [12] Chen J, Huang Q Q, Du Q G, et al. Localized surface plasmon resonance enhanced quantum dot light-emitting diodes via quantum dot-capped gold nanoparticles [J]. *RSC Advances*, 2014, 4(101): 57574-57579.
- [13] Kao C C, Su Y K, Lin C L, et al. Localized surface plasmon-enhanced nitride-based light-emitting diode with Ag nanotriangle array by nanosphere lithography [J]. *IEEE Photonics Technology Letters*, 2010, 22(13): 984-986.
- [14] Cho C Y, Lee S J, Song J H, et al. Enhanced optical output power of green light-emitting diodes by surface plasmon of gold nanoparticles [J]. *Applied Physics Letters*, 2011, 98(5): 051106.
- [15] Qiao Q, Shan C X, Zheng J, et al. Localized surface plasmon enhanced light-emitting devices [J]. *Journal of Materials Chemistry*, 2012, 22(19): 9481-9484.
- [16] Xu Y, Bian J, Zhang W H. Principles and processes of nanometric localized-surface-plasmonic optical sensors [J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2019, 56(20): 202407.
徐娅, 边捷, 张伟华. 局域表面等离激元纳米光学传感器的原理与进展[J]. *激光与光电子学进展*, 2019, 56(20): 202407.
- [17] Degiron A, Ebbesen T W. The role of localized surface plasmon modes in the enhanced transmission of periodic subwavelength apertures [J]. *Journal of Optics A: Pure and Applied Optics*, 2005, 7(2): S90-S96.
- [18] Liu J Y, Yang H, Luo X G, et al. Investigation of localized surface plasmons resonance properties of metal composition nanoparticles [J]. *Acta Optica Sinica*, 2010, 30(4): 1092-1095.
刘娟意, 杨欢, 罗先刚, 等. 金属复合纳米粒子的局域表面等离激元特性研究[J]. *光学学报*, 2010, 30(4): 1092-1095.
- [19] Zhao Y K, Yun F, Huang Y, et al. Efficiency roll-off suppression in organic light-emitting diodes using size-tunable bimetallic bowtie nanoantennas at high current densities [J]. *Applied Physics Letters*, 2016, 109(1): 013303.
- [20] Prodan E, Radloff C, Halas N J, et al. A hybridization model for the plasmon response of complex nanostructures [J]. *Science*, 2003, 302(5644): 419-422.
- [21] Zhang S P, Bao K, Halas N J, et al. Substrate-induced Fano resonances of a plasmonic nanocube: a route to increased-sensitivity localized surface plasmon resonance sensors revealed [J]. *Nano Letters*, 2011, 11(4): 1657-1663.
- [22] Knight M W, Wu Y P, Lassiter J B, et al. Substrates matter: influence of an adjacent dielectric on an individual plasmonic nanoparticle [J]. *Nano Letters*, 2009, 9(5): 2188-2192.