

# 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\*

陈新莲<sup>1)2)</sup> 孔凡敏<sup>1)</sup> 李康<sup>1)†</sup> 高晖<sup>1)</sup> 岳庆炆<sup>1)</sup>

1) (山东大学信息科学与工程学院, 济南 250100)

2) (济南大学物理科学与技术学院, 济南 250022)

(2012年2月7日收到; 2012年7月29日收到修改稿)

亚波长尺度光子晶体结构可有效提升发光二极管(LED)的光提取效率(LEE),然而在制造过程中会存在缺陷或无序.利用时域有限差分法对理想方形光子晶体结构进行了优化,在此基础上对三种无序光子晶体结构进行了仿真,研究了光子晶体结构参数的无序变化对GaN基蓝光LED LEE的影响.结果表明,光子晶体空气孔位置和半径的无序变化使优化的80 nm光子晶体LED的LEE下降,而可使非优化的60 nm光子晶体LED的LEE增加;当光子晶体空气孔位置和半径的无序变化量从0到±20 nm之间变化时,LEE最大会产生53.8%的浮动;光子晶体刻蚀深度的无序变化对LEE影响较小,一般可以忽略.研究结果为高性能蓝光光子晶体LED的设计制作提供了重要的理论参考.

**关键词:** 发光二极管, 无序光子晶体, 光提取效率, 时域有限差分法

**PACS:** 78.66.Fd, 78.20.Bh, 52.35.Mw, 42.70.Qs

**DOI:** 10.7498/aps.62.017805

## 1 引言

发光二极管(LED)作为一种半导体固体发光器件,具有环保节能、坚固耐用、可靠性高、体积小等诸多优点,在照明、通信、国防、医疗等领域有着广泛的应用前景<sup>[1,2]</sup>.GaN基蓝光LED可作为白光照明光源,很有可能替代白炽灯和荧光灯而成为新一代的绿色照明能源.由于GaN材料与空气折射率之间大的差异所引起的全内反射和Fresnel反射,有源层产生的光大部分陷落在半导体材料内部而转变为热能耗散掉,导致LED的外量子效率极差.LED的外量子效率(EQE)由内量子效率(IQE)和光提取效率(LEE)两部分相乘而得.目前对蓝光LED在波长450 nm IQE可以达到80%以上<sup>[3]</sup>.较低的光提取效率成为限制其应用的主要瓶颈.已有大量文献报道了提高LEE的方法与技术,主要有倒装结构<sup>[4-6]</sup>、倒金字塔结构<sup>[7]</sup>、表面

粗化<sup>[1,8]</sup>、光子晶体(PhCs)<sup>[9]</sup>等.表面粗化可以削弱全内反射限制,让更多的光经粗糙表面散射而逃逸出来,此方面的研究工作多集中在实验方面.近年来在LED顶端刻蚀PhCs的方法得到了广泛研究.虽然表面PhCs制作工艺水平越来越高,但在亚波长尺度,不可避免地会出现结构上的缺陷和有序,如空气孔圆柱的中心位置偏离格点位置、空气孔的半径及深度起伏等,这种无序变化会严重影响光子晶体的性能,使其出现一些新的特性,例如光子局域化就是由于在无序光子晶体中多重散射的光发生干涉造成的<sup>[10]</sup>.近年来,由这种无序引起的光子晶体的特性在理论和实验上得到广泛研究.其主要研究工作集中在无序光子晶体中光传播的局域化特性<sup>[11,12]</sup>及其电磁模式<sup>[13]</sup>研究方面,有关光子晶体结构参数的无序变化量对LED光提取效率影响研究较少.本文研究了光子晶体的结构参数的无序变化对LED LEE的影响,以期高性能蓝光

\* 国家重点基础研究发展计划(批准号: 2009CB930503, 2009CB930501)、国家自然科学基金(批准号: 61077043)、教育部留学回国人员科研启动基金、山东省优秀中青年科学家科研奖励基金(批准号: BS2009NJ002)和济南大学校科研基金(批准号: XKY0917)资助的课题.

† 通讯作者. E-mail: kangli@sdu.edu.cn

PhCs LED 的制作提供参考.

本文首先阐述了模拟构建的 GaN 基 LED 模型及其采用的计算方法,优化了有源层的位置及 PhCs 的空气孔半径;然后分析了位置无序变化、半径无序变化及深度无序变化对蓝光 GaN 基 LED LEE 的影响,并对结果从理论上给予解释和分析.

## 2 模型与计算方法

二维理想方形晶格光子晶体 LED 结构如图 1 所示. 图 1(a) 为 LED 沿纵切面的结构示意图,图 1(b)为理想的二维 PhCs 结构俯视图,自下而上依次为蓝宝石衬底、N-GaN、有源层和 P-GaN,其中蓝宝石衬底厚度为 1000 nm, N-GaN 和 P-GaN 厚度为 2000 nm. 此外,表面 PhCs 的刻蚀深度为  $H_0 = 350$  nm. 计算采用中心波长为 465 nm 的蓝光, PhCs 的晶格常数为  $a = 200$  nm 保持不变,空气孔的半径为  $R_0$ .

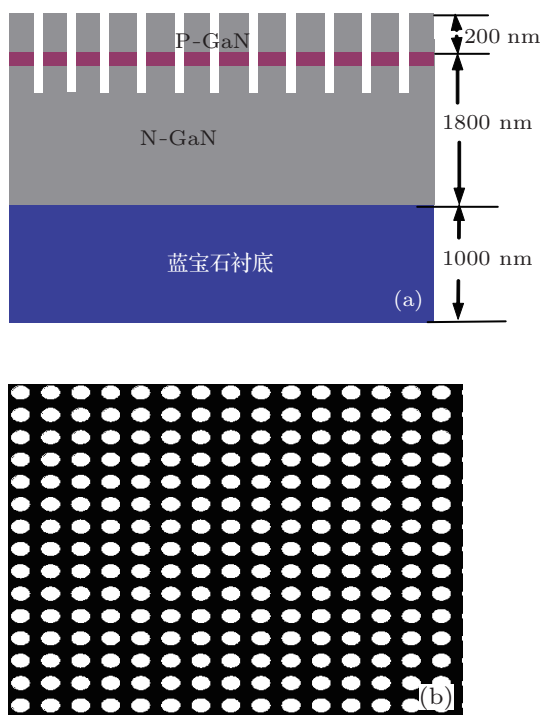


图 1 二维理想方形晶格空气孔型光子晶体 LED 结构 (a) LED 沿纵切面的结构示意图; (b) 理想的二维光子晶体结构

对于二维无序 PhCs 结构,规定 PhCs 的空气孔的中心位置限制在  $200 \text{ nm} \times 200 \text{ nm}$  的方形区域内变化,用随机函数来模拟 PhCs 结构参数的无序变化<sup>[14,15]</sup>,无序变化的空气孔中心位置的坐标  $(x,y)$  可表示为

$$x = \left[ i - \frac{(i_{\max} + 1)}{2} \right] a + (1 - 2 \times \text{Rnd}) D_x,$$

$$y = \left[ j - \frac{(j_{\max} + 1)}{2} \right] a + (1 - 2 \times \text{Rnd}) D_y, \quad (1)$$

其中  $i, j = 1, 2, 3, \dots$ , 分别表示在  $x$  和  $y$  方向产生的空气孔的序号,  $i_{\max}, j_{\max}$  分别为  $i, j$  的最大取值. Rnd 为通过计算机产生的 0 到 1 之间的随机数,  $D_x$  和  $D_y$  分别表示在  $x$  和  $y$  方向无序变化量,为了简便,本文计算过程中取  $D_x = D_y$ .

无序变化的 PhCs 的空气孔半径和刻蚀深度分别用  $R$  和  $H$  表示,其定义如下:

$$R = R_0 + (1 - 2 \times \text{Rnd}) D_r, \quad (2)$$

$$H = H_0 + (1 - 2 \times \text{Rnd}) D_h, \quad (3)$$

其中,  $D_r$  和  $D_h$  分别表示空气孔半径和刻蚀深度的无序变化量.

本文计算采用时域有限差分 (FDTD) 方法,用水平放置的电偶极子源模拟 LED 结构中电子-空穴复合发光. 由于 LED 光源的非相干性和 FDTD 算法自身的特性,若有源区选择多个电偶极子源或者引入周期性边界条件都将不可避免地产生非物理特性的干涉模式,导致计算结果失真,故本文只选择了单个电偶极子源模拟 LED 有源层. 在 FDTD 的数值模拟中,由于目前计算机内存资源的限制,模拟实际的 LED 结构是不可能的. 本文综合考虑仿真中数据所占内存及消耗时间的问题,仅在有限区域内对 LED 的能量分布进行数值计算. 同时文献 [16] 证明,较大区域内 LED 的能量分布计算可以在较小区域范围内进行,故本文选取模拟区域横向空间大小为  $4000 \text{ nm} \times 4000 \text{ nm}$ ,在计算区域四周添加了完美匹配层 (PML),以此避免截断边界处外来波和非电磁反射的影响. 为了使计算结果尽量准确,本文计算中采用了至少 3 次计算结果的平均值.

LED 顶端的 LEE 定义为

$$\eta_{\text{extr}} = P_{\text{up}} / P_{\text{source}} \times 100\%, \quad (4)$$

其中,  $P_{\text{up}}$  是 LED 顶端出光面法向功率积分值,即 LED 顶端辐射功率;  $P_{\text{source}}$  是包围电偶极子立方体的六个表面处向体外出射的功率的法向积分总和. 另外,考虑到 GaN 介质的折射率虚部在蓝光频段近似为零<sup>[17]</sup>,所以计算中忽略了由 GaN 材料引起的功率损耗.

### 3 计算结果及分析

#### 3.1 LED 结构有源层位置和 PhCs 空气孔半径的优化

##### 3.1.1 LED 结构有源层位置的优化

对有源层的位置进行优化是为了消除 PhCs 刻蚀带来的上下两个界面上反射造成的影响. 其实 PhCs 就像一个增透膜, 有源层距出光面位置的改变就相当于这层增透膜厚度的改变, 势必会对出光效率造成很大的影响, 所以很有必要优化有源层的位置. 图 2 考虑了当光子晶体的空气孔半径有一定的无序变化 ( $60 \text{ nm} \leq R \leq 90 \text{ nm}$ ) 时 LEE 随有源层距 P-GaN 上表面的距离  $d_{\text{P-GaN}}$  的变化关系. 通过计算可以发现, 将有源层置于距 P-GaN 层上表面为 200 nm 时, 顶端光提取效率最佳, 最高的 LEE 达 24.79%, 与没有结构的平板 LED 相比 LEE 增加了 6 倍以上. 实际上, 200 nm 的长度近似为蓝光在 GaN 材料一个波长的长度  $\sim \lambda/n$  ( $\lambda$  和  $n$  分别为空气中光的波长和材料的有效折射率), 这是经有源层发出的光到达 P-GaN 的上表面与从上表面反射的光发生干涉相长导致的. 源的位置对 LEE 的影响与文献 [18] 给出的平板结构的情况相一致. 无序 PhCs 的出现并未改变有源层的位置对 LEE 的影响. 本文下面的计算均设定有源层距 P-GaN 层上表面的距离  $d_{\text{P-GaN}} = 200 \text{ nm}$ .

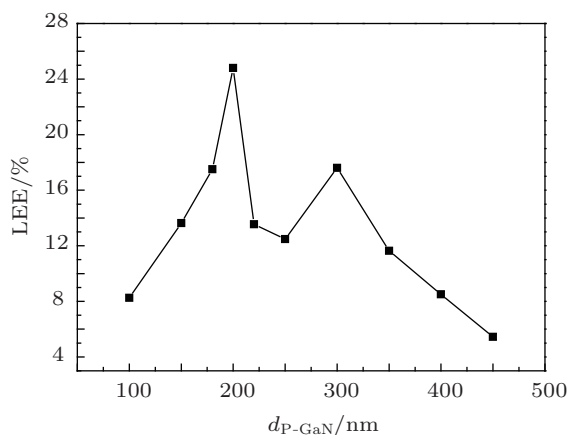


图 2 光提取效率随  $d_{\text{P-GaN}}$  的变化关系

##### 3.1.2 PhCs 空气孔半径的优化

理想方形 PhCs 的填充因子  $f = \pi R_0^2/a^2$ ,  $R_0$  为空气孔半径,  $a$  为晶格常数. 当  $a$  一定时,  $f$  只与  $R_0$  有关.

图 3 为 LEE 随空气孔半径  $R_0$  的变化关系. 为了后面的讨论, 同时给出了填充因子  $f$  随  $R_0$  的变化关系. 由图 3 可以看出, 在  $R_0 \leq 60 \text{ nm}$  时, LEE 随  $R_0$  的增加而缓慢增加, 当  $60 \text{ nm} < R_0 < 80 \text{ nm}$  时 LEE 增加较快, 当  $R_0 = 80 \text{ nm}$  时达到最大.  $R_0 = 60 \text{ nm}$  时对应的 LEE 为 11.66%, 此时填充因子  $f \approx 0.28$ ; 当  $R_0 = 80 \text{ nm}$  时光提取效率到达极大值, 其值为 28.71%, 对应的填充因子  $f \approx 0.50$ . 这表明填充因子对 PhCs LED 的 LEE 起着重要的作用, 在晶格常数  $a$  一定时, 空气孔过大或过小都不利于光的提取.

为了充分研究 PhCs 的结构参数的无序变化对 LEE 的影响, 在保持  $a = 200 \text{ nm}$  不变的情况下, 分别选择了非优化的半径  $R_0 = 60 \text{ nm}$  和优化半径  $R_0 = 80 \text{ nm}$  进行比较. 之所以选择这两个半径进行比较, 是因为由图 3 可以发现  $R_0 = 60 \text{ nm}$  是 LEE 缓慢变化与较快变化的一个转折位置; 而  $R_0 = 80 \text{ nm}$  是 LEE 效率最高的半径宽度.

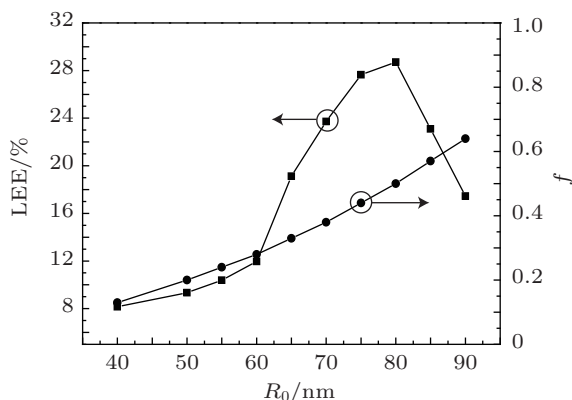


图 3 光提取效率随空气孔半径  $R_0$  的变化关系

#### 3.2 空气孔半径不变, 位置无序对 LED 光提取效率的影响

图 4 为由 (1) 式得到的当半径  $R_0 = 60 \text{ nm}$  和  $80 \text{ nm}$ 、无序变化量  $D_x$  或  $D_y$  分别为 20 和 40 nm 时无序 PhCs 结构图. 对于  $R_0 = 60 \text{ nm}$  的 PhCs, 为了避免在产生无序 PhCs 的过程中空气孔的重叠, 其位置无序变化量最大为 40 nm, 相应地,  $R_0 = 80 \text{ nm}$  PhCs 其位置无序变量最大为 20 nm.

图 5 是 LEE 随 PhCs 位置无序量  $D_x$  的变化关系. 图 5(a) 为  $R_0 = 60 \text{ nm}$  时 LEE 随  $D_x$  的变化关系, 虚线表示理想 PhCs 的结果, 点划线表示有无序变化时计算结果的平均值, 细竖线表示计算结果的浮动范围 (以下相同). 可以看出,  $R_0 = 60 \text{ nm}$  的无

序 PhCs LED 其 LEE 略有增加,但不明显. 因为当导模的波矢  $k_{//}$  满足公式  $|k_{//} + mG| < k_0$  的衍射条件时<sup>[19]</sup>, 可以通过光的衍射使导模变成辐射模, 式中  $k_{//}$  为平面内导模的波矢,  $G = 2\pi/a$  是晶格矢量. 空气孔中心位置的无序变化, 破坏了理想光子晶体的周期结构,  $a$  发生了变化,  $G$  相应地有一定的变化, 致使有更多的导模被衍射成辐射模, 使 LEE 增加. 但由于计算过程中无序变化量  $D_x$  变化范围不大 ( $\leq 40$  nm), 以致  $a$  的变化范围并不大, 所以增加的 LEE 能够满足衍射条件的导模有限, 使得

LEE 有增加但变化不明显. 图 5(b) 为  $R_0 = 60$  和 80 nm 时 LEE 随  $D_x$  的变化关系.  $R_0 = 80$  nm 时 PhCs 位置无序变化量对 LEE 的影响与  $R_0 = 60$  nm 时规律相反, LEE 随  $D_x$  的增加而减小, 并且对位置无序变化的影响更敏感. 这是因为对于  $R_0 = 80$  nm 的无序光子晶体, 位置的无序变化破坏了 PhCs 与导模的最佳耦合, 使 LEE 随  $D_x$  的增加而减小; 而对于  $R_0 = 60$  nm 的情况, 位置的无序变化改变了晶格矢量, 增加了满足衍射条件导模的数量, 从而使 LEE 增加.

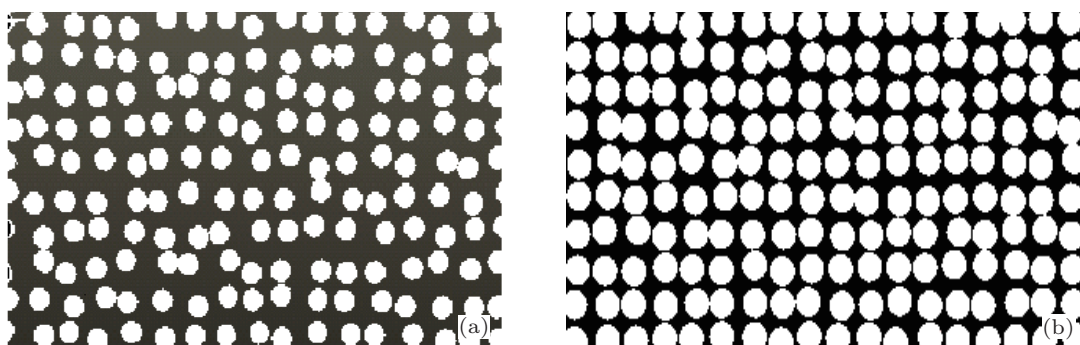


图 4 位置无序时光子晶体结构 (a)  $R_0 = 60$  nm,  $D_x = 40$  nm; (b)  $R_0 = 80$  nm,  $D_x = 20$  nm

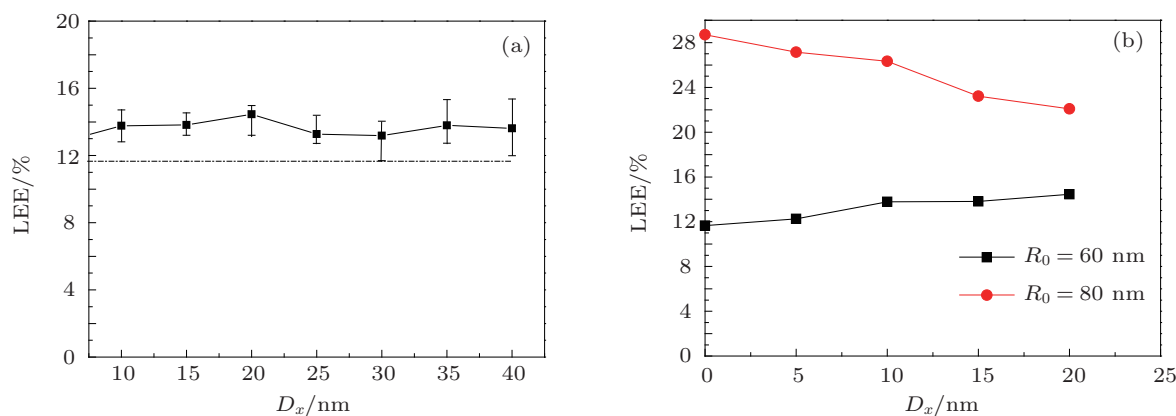


图 5 光提取效率随  $D_x$  的变化关系 (a)  $R_0 = 60$  nm 时光提取效率随  $D_x$  的变化关系; (b)  $R_0 = 60$  和 80 nm 时光提取效率随  $D_x$  的变化关系

### 3.3 空气孔的中心位置不变, 半径无序变化对 LED 光提取效率的影响

图 6 是由 (2) 式得到的当半径  $R_0$  分别为 60 和 80 nm, 无序变量  $D_r$  均为 20 nm 时无序 PhCs 的结构图, 图 7 为对该结构计算得到的 LEE 随  $D_r$  的变化关系. 图 7(a) 给出了当  $R_0 = 60$  nm 时 LEE 随  $D_r$  的变化关系, 虚线表示理想 PhCs LED 的 LEE. 从图中可以看出 LEE 随着  $D_r$  的增加而增加, 当  $D_r$  从 0 增加到 20 nm 时 LEE 从 11.66% 增到 17.93%, 提

高了 53.8%. 图 7(b) 比较了  $R_0$  分别为 60 和 80 nm 时半径无序变化对 LEE 的影响. 当  $R_0 = 80$  nm 时 LEE 随着  $D_r$  的增加而减小, 当  $D_r$  从 0 变到 20 nm 时, LEE 从 28.71% 降到 20.05%, 降低了 30%. 由此可见, PhCs 空气孔半径的无序变化使优化的 80 nm 空气孔 PhCs LED 的 LEE 下降, 而可使非优化的 60 nm 空气孔 PhCs LED 的 LEE 增加. 这是因为从图 3 可以发现,  $R_0 = 60$  nm 时, 当空气孔半径存在无序变化时, 即使在 60 nm 两侧有相同的变化量, 但由于半径大于 60 nm 后光提取效率增加速度要明显

快于半径小于 60 nm 的情形, 所以半径的无序使得 60 nm 孔径 LED 的光提取效率增加. 而对于优化的  $R_0 = 80$  nm 时, 半径的任何无序都会使光提取效率

降低. 这进一步证明, 晶格常数  $a$  确定时, 必对应特定优化的空气孔半径, 使 PhCs LED 可以获得最大的 LEE.

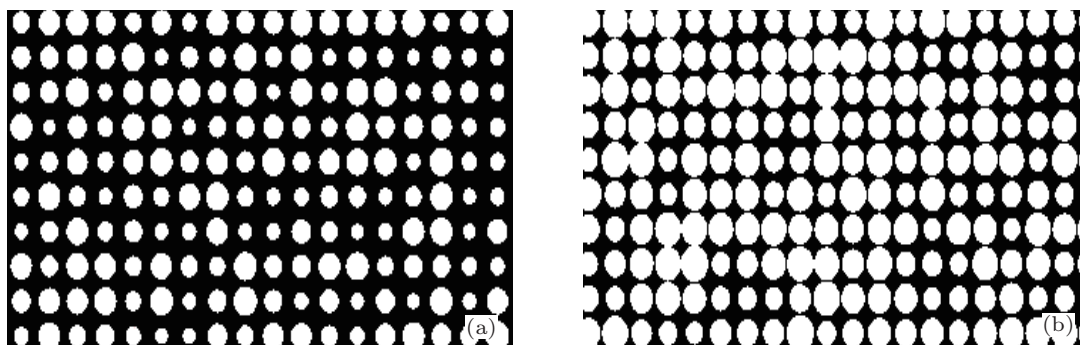


图 6 半径无序时光子晶体结构 (a)  $R_0 = 60$  nm,  $D_r = 20$  nm; (b)  $R_0 = 80$  nm,  $D_r = 20$  nm

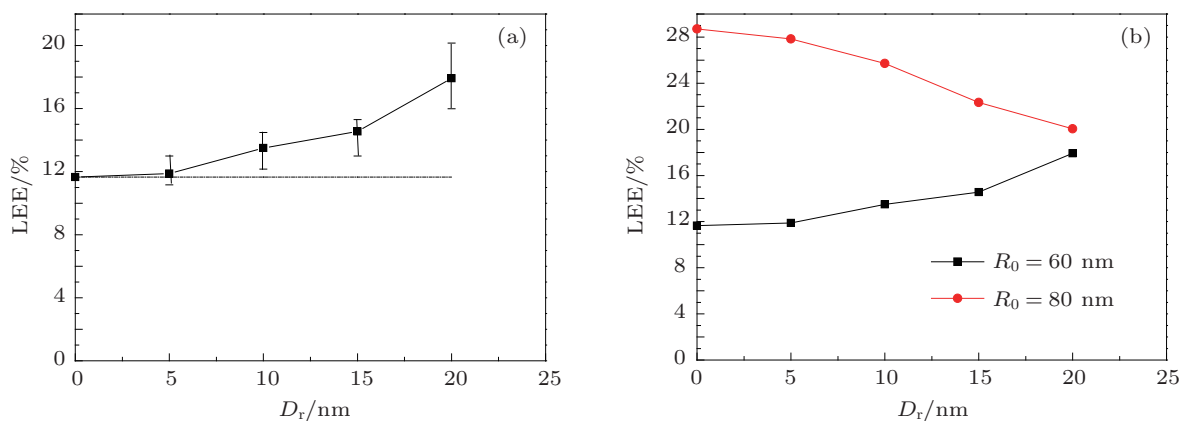


图 7 光提取效率随  $D_r$  的变化关系 (a)  $R_0 = 60$  nm 时光提取效率随  $D_r$  的变化关系; (b)  $R_0 = 60$  和 80 nm 时光提取效率随  $D_r$  的变化关系

### 3.4 空气孔的中心位置、半径不变, 刻蚀深度的无序变化对光提取效率的影响

图 8 计算了由 (3) 式得到的当 PhCs 的刻蚀深度存在无序变化时 LEE 随  $D_h$  的变化关系. 虚线为相应的理想 PhCs LED 的 LEE. 由图 8 可以看出, 当 PhCs 的刻蚀深度有一定的无序变化时, 光提取效率相对于理想光子晶体而言略有降低, 但其变化均在 1%—2% 之间. 因此在 LED PhCs 的制作中, 可以忽略刻蚀深度的不准确对 LED 的 LEE 的影响.

综合前面的结果及分析不难发现, PhCs 的空气孔位置、半径及刻蚀深度等结构参数的无序变化对 LED LEE 有不同程度的影响, 在 PhCs 加工工艺允许的误差下, 结合 FDTD 方法通过对结构优化,

可获得最佳 LEE 的 LED.

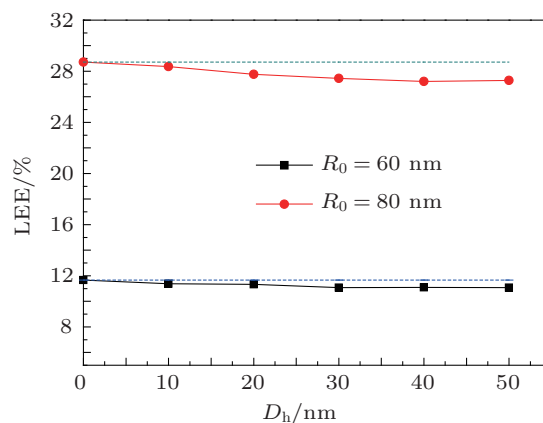


图 8 光提取效率随  $D_h$  的变化关系

## 4 结论

本文利用 FDTD 方法研究了二维光子晶体空气孔位置、半径和刻蚀深度的无序变化对 GaN 基蓝光 LED LEE 的影响. 研究表明, 空气孔位置变化一般呈现弱无序状态, 其对 LEE 的影响不显著; 空气孔半径的无序变化可以显著地影响 LED 的 LEE, 最大变化幅度可达 53.8%; 空气孔在深度刻蚀情况下, 其刻蚀深度在 20% 的范围

无序变化时, 对 LEE 的影响可以忽略; 通过比较  $R_0 = 60$  和  $80$  nm 的 PhCs 的位置、半径和刻蚀深度的无序变化对 LEE 影响, 得到位置和半径的无序变化会使得  $R_0 = 60$  nm 的 PhCs 的 LEE 增加, 而使  $R_0 = 80$  nm 的 PhCs 的 LEE 减小. 这说明不同结构参数的 PhCs LED 受结构参数无序变化的影响不同, 但每个 PhCs LED 会存在一组优化参数, 使其 LEE 达到最大, 其他 PhCs 结构参数的无序变化都会使 LEE 减小.

- [1] Schubert E F 2006 *Light-Emitting Diodes* (New York: Cambridge University Press) p21
- [2] Fang Z I, Qin J M 1992 *Semiconductor Light-Emitting Material and Device* (Shanghai: Fudan University Press) [方志烈, 秦金妹 1992 半导体发光材料和器件 (上海: 复旦大学出版社)]
- [3] Department of Energy 2008 *Solid State Lighting Research and Development Multi-Year Program Plan FY'09-FY'14* <<http://www.1eere.energy.gov/buildings/ssl/projects.html>>2012.2.7
- [4] Wierer J J, Steigerwald D A, Krames M R, O'Shea J J, Ludowise M J, Christenson G, Shen Y C, Lowery C, Martin P S, Subramanya S, Gotz W, Gardner N F, Kern R S, Stockman S A 2001 *Appl. Phys. Lett.* **78** 3379
- [5] Shchekin O B, Epler J E, Trottier T A, Margalith T, Steigerwald D A, Holcomb M O, Martin P S, Krames M R 2006 *Appl. Phys. Lett.* **89** 071109
- [6] Chao C H, Chuang S L, Wu T L 2006 *Appl. Phys. Lett.* **89** 091116
- [7] Krames M R, Ochiai-Holcomb M, Höfler G E, Carter-Coman C, Chen E I, Tan I H, Tan T S, Kocot C P, Hueschen M, Posselt J, Loh B, Sasser G, Collins D 1999 *Appl. Phys. Lett.* **75** 2365
- [8] Fujii T, Gao Y, Sharma R, Hu E L, Denbaars S P, Nakamura S 2004 *Appl. Phys. Lett.* **84** 855
- [9] Matioli E, Weisbuch C 2010 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **43** 354005
- [10] Xu X S, Chen H D, Zhang D Z 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 6433 (in Chinese) [许兴胜, 陈宏达, 张道中 2006 物理学报 **55** 6433]
- [11] Raedt H D, Lagendijk A, Vries P D 1989 *Phys. Rev. Lett.* **62** 47
- [12] Wang B W, Jin Y, He S L 2009 *J. Appl. Phys.* **106** 014508
- [13] Savona V 2011 *Phys. Rev. B* **85** 085301
- [14] Long D H, Hwang I K, Ryu S W 2009 *IEEE J. Sel. Top. Quan. Elec.* **15** 1257
- [15] Long D H, Kag H I, Wan S 2008 *Jpn. J. Appl. Phys.* **47** 4527
- [16] Wiesmann C 2009 *Ph. D. Dissertation* (Regensburg: Regensburg Universität)
- [17] Köhler U, As D J, Schöttker B, Frey T, Lischka K, Scheiner J, Shokhovets S, Goldhahn R 1999 *J. Appl. Phys.* **85** 404
- [18] Ryu H Y 2009 *J. Kore Phys. Soci.* **55** 2644
- [19] Matioli E, Fleury B, Rangel E, Melo T, Hu E, Speck J, Weisbuch C 2010 *Appl. Phys. Exp.* **3** 032103



# Improvement of light extraction efficiency of GaN-based blue light-emitting diode by disorder photonic crystal\*

Chen Xin-Lian<sup>1)2)</sup> Kong Fan-Min<sup>1)</sup> Li Kang<sup>1)†</sup> Gao Hui<sup>1)</sup> Yue Qing-Yang<sup>1)</sup>

1) (School of Information Science and Engineering, Shandong University, Jinan 250100, China)

2) (School of Physics Science and Technology, University of Jinan, Jinan 250022, China)

(Received 7 February 2012; revised manuscript received 29 July 2012)

## Abstract

Sub-wavelength photonic crystal can effectively improve the light extraction efficiency (LEE) of the light emitting diode (LED). However, it is inevitable to have defects, (namely disorder structures) during its fabrication. In this study, the LED model with ideal quadrate photonic crystal is optimized by using the finite-difference time domain method. Three different LED structures with various disordered photonic crystals are further simulated. We investigate the influences of several stochastic variables (including position, radius, and depth of an air hole) of the photonic crystal on the LEE of GaN based blue LEDs. It can be found that regarding photonic crystal LED whose air hole radius is optimized to 80 nm, the stochastic variables of the position and radius will reduce its LEE. However, an opposite trend is found when this radius is replaced by 60 nm, which is not optimized. Furthermore, the LEE fluctuates inside to an extent of 53.8% as two stochastic variables (including the randomized position and the randomized radius) change from 0 nm to  $\pm 20$  nm. The influence of the stochastic variables of the depth of air hole can be neglected since this variation is very small. The results in this paper have an important reference value for designing and fabricating high-performance blue light photonic crystal LED.

**Keywords:** light emitting diode, disorder photonic crystals, light extraction efficiency, finite-difference time-domain method

**PACS:** 78.66.Fd, 78.20.Bh, 52.35.Mw, 42.70.Qs

**DOI:** 10.7498/aps.62.017805

\* Project supported by the National Basic Research Program of China (Grant Nos. 2009CB930503, 2009CB930501), the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 61077043), the Scientific Research Foundation for the Returned Overseas Chinese Scholars, Ministry of Education of China, the Research Award Fund for Outstanding Young Scientist of Shandong Province, China (Grant No. BS2009NJ002), the Scientific Research Foundation of University of Jinan, China (Grant No. XKY0917).

† Corresponding author. E-mail: kangli@sdu.edu.cn