

## 二维单层硒化钼和硒化钨晶体的声子辅助上转换荧光光谱

徐伟高<sup>a</sup> 赵琰媛<sup>a</sup> 申超<sup>a</sup> 张俊<sup>a</sup> 熊启华<sup>\*,a,b</sup>

<sup>a</sup> 南洋理工大学数理科学学院 新加坡 637371)

<sup>b</sup> 南洋理工大学电气与电子工程学院 新加坡 639798)

**摘要** 声子辅助的上转换荧光是固体激光制冷效应的基础. 激光制冷具有体积小、效率高、无振动干扰、无需制冷剂等优势而具有重要应用价值, 探索更多可以实现激光制冷效应的材料是相关领域的重要研究内容. 二维单层过渡金属硫属半导体化合物是直接带隙荧光材料, 其完美的晶格结构、辐射光子提取效率高等特征使其有望成为一种新型激光制冷材料. 以 MoSe<sub>2</sub> 和 WSe<sub>2</sub> 为例, 本文研究了不同波长激发下样品的上转换荧光, 并通过激光功率依赖性实验和温度依赖性实验证实了该上转换荧光过程的发光机制为声子辅助过程.

**关键词** 二维单层晶体; 过渡金属硫属化合物; 上转换荧光光谱; 激光制冷

### Phonon-assisted Upconversion Photoluminescence in Monolayer MoSe<sub>2</sub> and WSe<sub>2</sub>

Xu, Weigao<sup>a</sup> Zhao, Yanyuan<sup>a</sup> Shen, Chao<sup>a</sup> Zhang, Jun<sup>a</sup> Xiong, Qihua<sup>\*,a,b</sup>

<sup>a</sup> Division of Physics and Applied Physics, School of Physical and Mathematical Sciences, Nanyang Technological University, Singapore 637371)

<sup>b</sup> NOVITAS, Nanoelectronics Centre of Excellence, School of Electrical and Electronic Engineering, Nanyang Technological University, Singapore 639798)

**Abstract** Phonon-assisted upconversion photoluminescence is the basis of laser cooling effect in solids. Compared to conventional cooling methods, laser cooling has many advantages such as compactness, high efficiency, free of vibrational disturbance and refrigerant-free, etc. Exploring more semiconducting materials in which a net cooling effect can be observed is an important area among the laser cooling community. Monolayer two-dimensional transition metal dichalcogenides (TMDs) like MoSe<sub>2</sub> and WSe<sub>2</sub> are direct band gap semiconductors. The perfect crystal structure and high extraction efficiency (due to thickness at atomic level) guarantee them the possibility to be potential candidates for laser cooling. In this work, with a Ti-sapphire tunable laser (pumped by a 532 nm laser), we studied the upconversion photoluminescence and its wavelength-dependence. In detail, we implemented experiments on laser power-dependent photoluminescence intensity, the linearity fitting results (at low power) show that it is a phonon-assisted upconversion photoluminescence process; furthermore, this mechanism is also verified from the temperature-dependent upconversion photoluminescence intensity. Further experiments on the investigation of which kinds of phonons are involved in the upconversion process and its efficiency, as well as the design of a sample structure that is free of background absorbance, are still required to help to tell whether net laser cooling can be achieved, or how it can be achieved in monolayers TMDs.

**Keywords** monolayer two-dimensional crystals; transition metal dichalcogenides (TMDs); upconversion photoluminescence; laser cooling

## 1 引言

上转换荧光(upconversion photoluminescence)也称反斯托克斯荧光(anti-Stokes photoluminescence), 是指用能量稍低的光子激发, 使样品发出能量稍高光子的辐射过程. 根据 Pringsheim 在 1929 年提出的模型<sup>[1]</sup>, 在单色光照下样品辐射能量大于入射光的荧光, 可以降低物体温度, 从而实现光制冷. 自 1995 年以来, 人们在稀土掺杂的玻璃<sup>[2]</sup>和半导体 CdS 纳米带<sup>[3]</sup>中分别实现了从室

温到 110 和 250 K 的激光制冷. 在固体材料中, 热能以声子的形式存在, 光制冷效应的前提是上转换荧光辐射过程中伴随着声子的湮灭, 即声子辅助的上转换荧光过程, 这一过程通常取决于样品的电子-声子耦合作用. 除此之外, 只有当内量子效率足够高、背景吸收和荧光光子再吸收效率足够低等条件同时得到满足时, 才有可能实现净激光制冷效应.

二维过渡金属硫属半导体化合物(MoS<sub>2</sub>、MoSe<sub>2</sub>、

\* E-mail: qihua@ntu.edu.sg; Tel.: (65)-65138495; Fax: 65-67957981

Received March 30, 2015; published May 19, 2015.

Project supported by the Singapore National Research Foundation via a fellowship grant (No. NRF-RF2009-06), Ministry of Education via a Tier 2 grant (No. MOE2012-T2-2-086) and Nanyang Technological University via a start-up grant support (No. M58110061).

项目受新加坡国家研究基金(No. NRF-RF2009-06)、教育部 Tier2 基金(No. MOE2012-T2-2-086)和南洋理工大学启动基金(No. M58110061)资助.

WS<sub>2</sub>、WSe<sub>2</sub>)因其独特的电子结构和光学性质<sup>[4]</sup>, 近年来吸引了相关领域学者们的广泛兴趣. 研究内容涉及谷电子学<sup>[5]</sup>、磁光效应<sup>[6]</sup>、层内<sup>[7]</sup>与层间<sup>[8]</sup>异质结、光电检测器<sup>[9]</sup>、激光器<sup>[10]</sup>等各个方面. 更详细地认识和理解二维过渡金属硫属化合物的电子和声子结构及其发光行为, 不仅有助于探索和研究一些基本物理现象, 也是未来实际应用领域需要解决的关键问题之一.

考虑到二维单层过渡金属硫属半导体化合物均是直接带隙, 同时单层厚度结构中几乎不存在辐射光子的再吸收过程, 能否在该体系中实现激光制冷是一个我们很感兴趣的问题. 相比于其它制冷方式, 激光制冷具有体积小、效率高、无振动干扰以及无需制冷剂等优势<sup>[11]</sup>. 由于二维晶体中许多新奇物理现象都只能在低温下进行观测, 激光制冷的实现可以使这些测试非常便捷; 如果二维材料样品表面负载的小分子或者其它二维结构也可以被降温, 就可以应用于更复杂体系的研究.

声子辅助的上转换荧光过程如图 1b(左)所示, 电子吸收入射光子能量和一个或多个声子能量后跃迁到激发态, 经过非辐射弛豫后辐射能量大于入射光的光子. 与此不同, 在上转换荧光光谱中还可能存在另外一种基于多光子过程的上转换荧光机制. 如图 1b(右)所示的双光子荧光过程中, 电子通过吸收两个光子跃迁到达激发态, 然后经过动量弛豫过程再辐射复合发射光子. 多光子荧光光谱技术已在各种成像分析领域得到了广泛应用<sup>[12]</sup>. 如图 1a 所示, 我们将选取 MoSe<sub>2</sub> 和 WSe<sub>2</sub> 两种典型的单层过渡金属硫属化合物材料作为样本, 研究其上转换发光行为与发光机制, 并探讨其作为激光制冷材料的可能性.

## 2 结果与讨论

### 2.1 Stokes 与 anti-Stokes 荧光光谱

如图 2 所示, 我们利用连续可调谐钛宝石激光器, 首先测试了 740~830 nm 范围逐步变换激发光波长时单层 MoSe<sub>2</sub> 样品的荧光光谱. 图 2a 给出了相应的 Stokes 荧光和 anti-Stokes 荧光的强度归一化谱图. 当入射激光能量小于材料带边时, 即从 792.2 nm 之后, 可以发现荧光峰位有约 1 nm 左右的红移(Stokes 荧光峰位为 791 nm, anti-Stokes 荧光峰位为 792 nm). 这是由于 Stokes 荧光过程中电子被激发到较高能级, 相比于电子吸收声子跃迁到激发态的 anti-Stokes 过程, 电子拥有较大的动量和能量, 从而辐射能量更大的光子.

在对比样品的 Stokes 荧光和 anti-Stokes 荧光强度时, 首先需要考虑共振因素. 如图 2b 所示, 样品在 785.1 nm 激发时荧光强度最强, 能量略高于最佳共振条件(≈792 nm). 这一方面是由于荧光辐射强度显著地受共振条件影响, 另一方面也表明, 以荧光峰值能量为中心, 相同能量差激发下的 Stokes 荧光整体强于

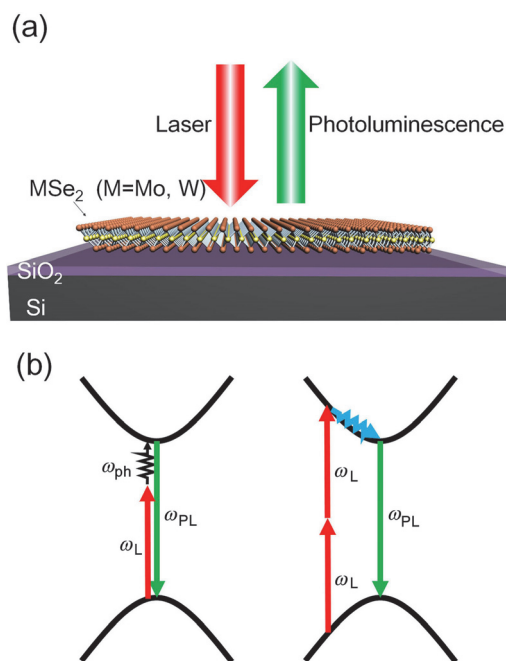


图 1 (a) 样品结构示意图; (b) 声子辅助上转换荧光过程(左)和双光子荧光过程示意图(右).

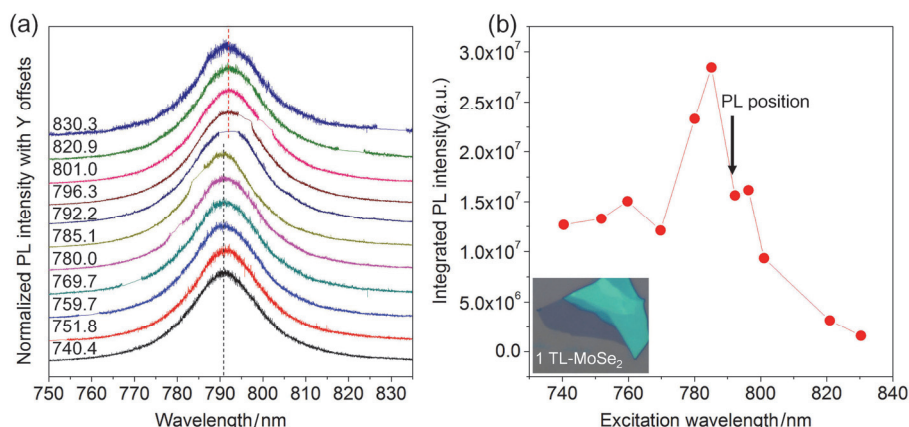
Figure 1 (a) Schematic of sample structure. (b) Schematic illustration of a phonon-assisted upconversion process (left) and a two-photon photoluminescence process (right).

anti-Stokes 荧光. 可以发现, 在远离共振条件的 Stokes 发光区域(740~760 nm), 强度变化平缓. 而在 anti-Stokes 发光区域, 随着激光波长变长荧光峰强度迅速衰减. 这一方面是由于 anti-Stokes 荧光的激发波长处于材料的带边以下, 吸收效率随波长增大而迅速降低; 与此同时, 该现象也受样品中电子-声子耦合作用强度的影响.

### 2.2 功率依赖关系与发光机制

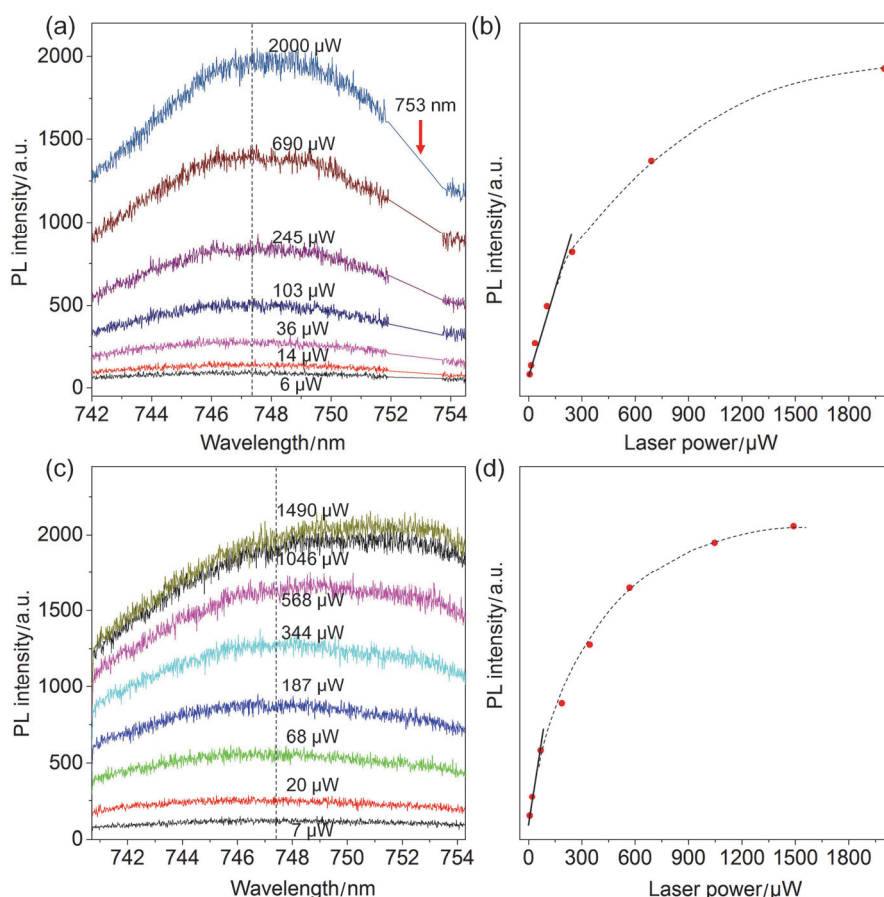
以上实验中我们成功获得了室温下单层 MoSe<sub>2</sub> 样品的上转换荧光光谱, 并研究了其激发波长与荧光强度关系. 单层 WSe<sub>2</sub> 样品的相关实验也显示了一致的趋势(我们将在 2.3 节中结合低温实验进一步分析). 目前为止, 我们尚且无法确定单层 MoSe<sub>2</sub> 和 WSe<sub>2</sub> 中观测到的上转换荧光是属于声子辅助的过程还是多光子过程. 这可以通过激发光功率与荧光强度关系进行进一步验证. 因为多光子荧光过程首先需要发生多光子吸收, 其发光强度会随激发光功率增加而以幂函数的形式增加(例如双光子和三光子过程分别为与入射光功率的二次方和三次方成正比). 而相应地, 由于声子辅助的上转换荧光每次跃迁只吸收一个光子, 因而(在发生饱和和吸收之前)荧光强度会随激发光功率的增加而线性增加.

以单层 WSe<sub>2</sub> 为例, 如图 3a 和 3b 所示, 随激发光功率的增加, anti-Stokes 荧光峰强度呈线性增加趋势, 并



**图 2** 室温下不同激发波长(740~830 nm)条件下单层硒化钼晶体的荧光光谱。(a) 不同激发波长下强度归一化的荧光光谱, 下方虚线和上方虚线分别标注了 Stokes 荧光和 anti-Stokes 荧光的峰位; (b) 不同激发波长下荧光峰积分强度(经过功率校正)比较, 插图为单层硒化钼样品的光学显微图像

**Figure 2** Photoluminescence from monolayer MoSe<sub>2</sub> crystal under different excitation wavelength at room temperature. (a) Normalized photoluminescence spectra under different excitation wavelength. Lower and upper dashed line indicate the peak positions of Stokes and anti-Stokes photoluminescence, respectively; (b) Integrated photoluminescence intensity under different wavelength with normalized laser power, inset is the optical image of a monolayer MoSe<sub>2</sub> sample



**图 3** (a, b)不同激光功率下(6, 14, 36, 103, 245, 690, 2000  $\mu\text{W}$ )单层硒化钨晶体的(a) anti-Stokes 荧光光谱与(b)对应的谱峰强度信息. 激发波长为 753 nm. (c, d)不同激光功率下(7, 20, 68, 187, 344, 568, 1046, 1490  $\mu\text{W}$ )单层硒化钨晶体的(c) Stokes 荧光光谱与(d)对应的谱峰强度信息. 激发波长为 532 nm. (a)和(c)中虚线分别表示最低功率下荧光峰的峰位

**Figure 3** (a, b) Anit-Stokes Photoluminescence from monolayer WSe<sub>2</sub> crystal under different laser power (6, 14, 36, 103, 245, 690, 2000  $\mu\text{W}$ ). The excitation wavelength is 753 nm. (c, d) Stokes Photoluminescence from monolayer WSe<sub>2</sub> crystal under different laser power (7, 20, 68, 187, 344, 568, 1046, 1490  $\mu\text{W}$ ). The excitation wavelength is 532 nm. Dashed lines in (a) and (c) indicate the PL peak center of which measured at the lowest power

在 0.3 mW 之后逐渐偏离线性关系并呈逐渐“饱和”趋势(相应地, MoSe<sub>2</sub>的相关实验显示了类似现象). 该现象可从两个可能角度加以理解: 一方面, 在 anti-Stokes 上转换过程中, 我们选择的激光能量位于低于半导体带隙的 Urbach 带尾, 激发光激发价带带尾电子到导带带尾并在价带带尾留下空穴, 处于带尾的电子和空穴吸收声子后跃迁到更高的能级后发射出上转换荧光光子<sup>[13]</sup>. 当激发光强度逐渐增加, 导带带尾的电子和价带带尾的空穴浓度增加, 从而导致能带的填充效应, 使得激发光能量位置的吸收趋于饱和而导致上转换荧光强度的“饱和”效应. Stokes 荧光过程中, 由于激发态电子可以很快发生热弛豫到低能级, 载流子填充效应引发的饱和和吸收效应并不明显. 另一方面, 较高功率下激光的光漂白作用(主要由于光照下基底的热效应)对样品的结构破坏以及热效应导致的样品温度升高也均会导致发光效率下降, 从而使荧光强度偏离线性关系. 针对以上分析, 我们进行了 532 nm 激发下 Stokes 荧光的强度与激发功率依赖关系实验, 结果如图 3c 和 3d 所示. 可以发现, Stokes 过程中荧光强度的“饱和”效应更加明显, 在 1490 μW 时荧光强度就已经接近最大值(更高功率下荧光强度反而下降, 并在切换到低功率后不可逆). 对比不同功率下荧光峰的峰位也可发现, Stokes 和 anti-Stokes 荧光峰位在最大功率下分别有约 4 nm 和不到 1 nm 的红移, 表明了 Stokes 荧光过程中发生了更显著的样品升温, 与预期相符. 据此推测, 导致 anti-Stokes 荧光在高功率下“饱和”效应的主要因素是激光的光致破坏作用(根据荧光峰位可知实验条件下 anti-Stokes 过程中样品升温并不明显).

为了避免长时间高功率辐照下样品发光变弱(光致

破坏), 我们采用了较短的积分时间(1 s). 根据以上特征, 我们可以排除基于多光子过程的上转换荧光机制, 从而可以推测, 在本论文实验条件下(功率小于 0.3 mW), 在单层 MoSe<sub>2</sub> 和 WSe<sub>2</sub> 晶体中主导的上转换发光机制为声子辅助的上转换荧光过程.

## 2.3 温度依赖关系与发光机制

### 2.3.1 低温下的 Stokes 荧光

随着温度降低, 晶格振动不断弱化, 处于振动激发态的声子越来越少, 发生声子辅助的上转换荧光的几率也会更小. 另一方面, 随着温度降低, 非辐射复合寿命显著提高, 非辐射跃迁几率下降, 因此通常低温条件下样品的 Stokes 荧光会变强. 结合这两点, 通过考察单层 WSe<sub>2</sub> 样品在不同温度下的上转换荧光特征, 我们也可以从另一方面理解其发光机制.

如图 4a 和 4b 所示分别为单层 MoSe<sub>2</sub> 晶体(a)和 WSe<sub>2</sub> 晶体(b)在 77~293 (300) K 温度范围内的荧光光谱. 如图 4 所示, 随着温度不断降低, 荧光光谱上开始出现谱峰劈裂, 即激子(exciton)峰与荷电激子(trion)峰. 另外, 根据实验结果我们还发现 Stokes 荧光强度随温度降低总体呈变强趋势, 并伴随着荧光峰峰位的蓝移; 且相比于 WSe<sub>2</sub>, MoSe<sub>2</sub> 荧光强度随温度降低的增强趋势更为明显, 这可能是由于 WSe<sub>2</sub> 具有更高的室温量子效率.

### 2.3.2 不同温度下的 Stokes 与 anti-Stokes 荧光

结合图 5 与图 4b(其中 WSe<sub>2</sub> 为同一片样品), 在 300 K 和 150 K 时主导的荧光峰为激子峰, 而在 77 K 时主导的荧光峰为荷电激子峰. 在考察荧光强度随激发波长的变化关系时, 共振轮廓与激子峰、荷电激子峰的关系也是我们感兴趣的内容. 但从图 5 中我们均只观察到了一

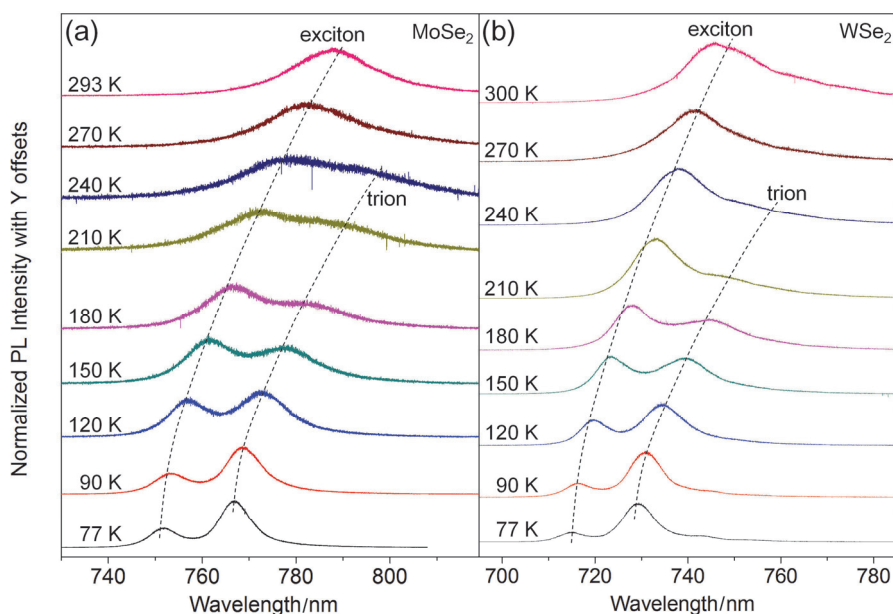


图 4 不同温度下单层(a)硒化钼晶体和(b)硒化钨晶体的荧光光谱(激发波长为 532 nm)

Figure 4 Photoluminescence from monolayer (a) MoSe<sub>2</sub> crystal and (b) WSe<sub>2</sub> crystal under different temperature (the excitation wavelength is 532 nm)

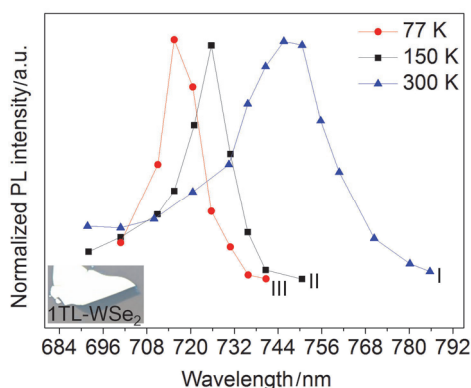


图5 不同温度下单层硒化钨晶体荧光强度随激发波长的变化关系(为方便显示对各温度进行了强度归一化)

**Figure 5** Excitation wavelength dependent photoluminescence intensity from monolayer WSe<sub>2</sub> crystal under different temperature (data set for different temperature has been normalized.)

(I) 300 K; (II) 150 K; (III) 77 K. Inset is the optical image of a monolayer WSe<sub>2</sub> sample

个单峰(高温时较宽), 我们将其指认为带边能量共振导致的荧光共振. 当然, 探索荷电激子峰附近共振现象的细节也有重要意义, 需要通过进一步实验验证.

我们继续关注三个不同温度下的上转换荧光强度. 如图6a所示为以Stokes激发(532 nm)时的荧光强度的激发波长依赖关系. 结合图4b, 77, 150和300 K上转换激发时对应的激子荧光峰位分别为721, 729和750 nm. 如图6b所示, 在不同温度下进行上转换荧光激发(保持激发波长与荧光峰能量间隔一致), 高温时具有更高的

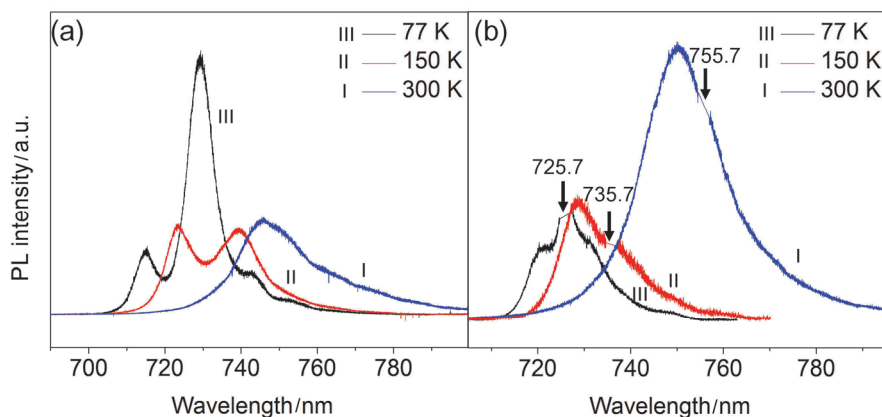


图6 不同温度下(77, 150和300 K)的(a)Stokes 荧光强度与(b)上转换(anti-Stokes)荧光强度比较

**Figure 6** (a) Stokes photoluminescence intensity variation and (b) upconversion photoluminescence intensity variation under different temperature (77, 150 and 300 K)

Excitation wavelength for Stokes photoluminescence is 532 nm; the corresponding excitation wavelengths for the related upconversion photoluminescence at 77, 150 and 300 K are 725.7, 735.7 and 755.7 nm, respectively

## References

- [1] Pringsheim, P. *Zeitschrift für Physik* **1929**, *57*, 739.
- [2] (a) Epstein, R. I.; Buchwald, M. I.; Edwards, B. C.; Gosnell, T. R.; Mungan, C. E. *Nature* **1995**, *377*, 500; (b) Seletskiy, D. V.; Melgaard, S. D.; Bigotta, S.; Di Lieto, A.; Tonelli, M.; Sheik-Bahae, M. *Nat. Photonics* **2010**, *4*, 161; (c) Seletskiy, D. V.; Melgaard, S. D.; Epstein, R. I.; Di Lieto, A.; Tonelli, M.; Sheik-Bahae, M. *Opt. Express* **2011**, *19*, 18229.
- [3] (a) Zhang, J.; Li, D. H.; Chen, R. J.; Xiong, Q. H. *Nature* **2013**, *493*, 504; (b) Li, D. H.; Zhang, J.; Xiong, Q. H. *Opt. Express* **2013**, *21*, 19302; (c) Li, D. H.; Zhang, J.; Wang, X. J.; Huang, B. L.; Xiong, Q. H. *Nano Lett.* **2014**, *14*, 4724.
- [4] Wang, Q. H.; Kalantar-Zadeh, K.; Kis, A.; Coleman, J. N.; Strano, M. S. *Nat. Nanotechnol.* **2012**, *7*, 699.
- [5] (a) Cao, T.; Wang, G.; Han, W. P.; Ye, H. Q.; Zhu, C. R.; Shi, J. R.;

上转换荧光强度, 进一步印证了 WSe<sub>2</sub> 晶体中的上转换荧光为声子辅助过程.

## 3 结论

通过对单层 WSe<sub>2</sub> 和 MoSe<sub>2</sub> 材料的荧光光谱实验, 我们测量了不同波长、激光功率和温度条件下的上转换荧光光谱, 证实了其发光机制为声子辅助的上转换过程. 这预示了二维过渡金属硫属化合物具有发展成为激光制冷材料的可能性. 当然, 要真正实现(或者探讨能否实现)激光制冷, 需要详细了解该体系中具体哪些声子<sup>[14]</sup>参与了上转换发光及其发光效率, 也包括样品结构设计中考虑如何有效避免 SiO<sub>2</sub>/Si 基底的背景吸收等问题. 例如, 在如图 3a 所示的激光功率依赖性实验中, 2000 μW 激发下已经可以观察到荧光谱峰约有 0.7 nm 的红移, 即表明当前测试体系中我们只观察到了激光加热效应.

## 4 实验部分

本文所有光谱通过 Horiba T64000 三光栅光谱仪以背散射方式采集. 低温实验在液氮冷却的真空低温台内进行. WSe<sub>2</sub> 和 MoSe<sub>2</sub> 晶体通过机械剥离法制备<sup>[15]</sup>. 单层样品通过拉曼光谱<sup>[16]</sup>和光学显微图像共同确定. 在波长扫描实验中, 我们使用了 Matisse TR 钛宝石激光器 (532 nm 泵浦光激发).

- Niu, Q.; Tan, P. H.; Wang, E.; Liu, B. L.; Feng, J. *Nat. Commun.* **2012**, *3*, 887; (b) Zeng, H. L.; Dai, J. F.; Yao, W.; Xiao, D.; Cui, X. D. *Nat. Nanotechnol.* **2012**, *7*, 490.
- [6] Aivazian, G.; Gong, Z. R.; Jones, A. M.; Chu, R. L.; Yan, J.; Mandrus, D. G.; Zhang, C. W.; Cobden, D.; Yao, W.; Xu, X. D. *Nature Physics* **2015**, *11*, 148.
- [7] (a) Huang, C.; Wu, S.; Sanchez, A. M.; Peters, J. J.; Beanland, R.; Ross, J. S.; Rivera, P.; Yao, W.; Cobden, D. H.; Xu, X. *Nat. Mater.* **2014**, *13*, 1096; (b) Feng, Q.; Zhu, Y.; Hong, J.; Zhang, M.; Duan, W.; Mao, N.; Wu, J.; Xu, H.; Dong, F.; Lin, F.; Jin, C.; Wang, C.; Zhang, J.; Xie, L. *Adv. Mater.* **2014**, *26*, 2648, 2613.
- [8] Rivera, P.; Schaibley, J. R.; Jones, A. M.; Ross, J. S.; Wu, S.; Aivazian, G.; Klement, P.; Seyler, K.; Clark, G.; Ghimire, N. J.; Yan, J.; Mandrus, D. G.; Yao, W.; Xu, X. *Nat. Commun.* **2015**, *6*, 6242.
- [9] Lopez-Sanchez, O.; Lembke, D.; Kayci, M.; Radenovic, A.; Kis, A. *Nat. Nanotechnol.* **2013**, *8*, 497.
- [10] Wu, S. F.; Buckley, S.; Schaibley, J. R.; Feng, L. F.; Yan, J. Q.; Mandrus, D. G.; Hatami, F.; Yao, W.; Vučković, J.; Majumdar, A.; Xu, X. D. *Nature* **2015**, *520*, 69.
- [11] Nemova, G.; Kashyap, R. *Rep. Prog. Phys.* **2010**, *73*, 086501.
- [12] (a) Denk, W.; Strickler, J. H.; Webb, W. W. *Science* **1990**, *248*, 73; (b) Chen, G. Y.; Qiu, H. L.; Prasad, P. N.; Chen, X. Y. *Chem. Rev.* **2014**, *114*, 5161.
- [13] Khurgin, J. B. *Phys. Rev. B* **2008**, *77*, 235206.
- [14] (a) Sahin, H.; Tongay, S.; Horzum, S.; Fan, W.; Zhou, J.; Li, J.; Wu, J.; Peeters, F. M. *Phys. Rev. B* **2013**, *87*, 165409; (b) Luo, X.; Zhao, Y. Y.; Zhang, J.; Toh, M. L.; Kloc, C.; Xiong, Q. H.; Quek, S. Y. *Phys. Rev. B* **2013**, *88*, 195313.
- [15] Novoselov, K. S.; Jiang, D.; Schedin, F.; Booth, T. J.; Khotkevich, V. V.; Morozov, S. V.; Geim, A. K. *Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A.* **2005**, *102*, 10451.
- [16] Zhao, Y. Y.; Luo, X.; Li, H.; Zhang, J.; Araujo, P. T.; Gan, C. K.; Wu, J.; Zhang, H.; Quek, S. Y.; Dresselhaus, M. S.; Xiong, Q. H. *Nano Lett.* **2013**, *13*, 1007.

(Zhao, X.)