

引用格式: LIAO Han^{1,2,4}, SHE Xiao-juan^{1,2}, TAO Lue, et al. Photoluminescence Spectrum of Monolayer MoSe₂ Tuned by Strain[J]. *Acta Photonica Sinica*, 2020, 49(6):0616002

廖涵,余小娟,陶略,等. 应力调控单层 MoSe₂的光致发光光谱特性[J]. 光子学报, 2020, 49(6):0616002

应力调控单层 MoSe₂的光致发光光谱特性

廖涵^{1,2,4}, 余小娟^{1,2}, 陶略^{1,2}, 李杨^{1,2}, 张加祥¹, 甘甫烷^{1,2,3,4}, 刘志^{1,4}

(1 中国科学院上海微系统与信息技术研究所, 上海 200050)

(2 中国科学院大学, 北京 100049)

(3 中国科学院大学材料与光电研究中心, 北京 100049)

(4 上海科技大学物质科学与技术学院, 上海 201210)

摘要:为了探究二维材料在片上可调有源光学器件领域的应用潜力,通过干法转印将由机械剥离法得到的高品质单层二硒化钼转移到正面涂有150 nm厚聚甲基丙烯酸甲酯的双轴压电陶瓷上,制作出可应力调控发光性质的单层二硒化钼光源。对双轴压电陶瓷施加驱动电压,使电信号转化为应力信号,观察低温下(~ 5 K)二硒化钼光致发光光谱中本征激子态、带电激子态信号峰随应力变化的规律。结果表明:在应力由拉伸应力转变为压应力并逐渐增大的过程中,本征激子态、带电激子态信号峰分别出现了 ~ 3.8 meV、 ~ 3.7 meV的波长蓝移。增大压应力、拉伸应力都会导致本征激子态、带电激子态信号峰光强线性降低。同时,与泵浦光圆极化相关的圆偏振度也随应力变化表现出规律性改变。此项研究证明了应力调控与单层二硒化钼光学性质之间的紧密关系,为开发各类基于二维材料的片上可调有源光学器件提供支持。

关键词:纳米材料;光电器件;光致发光;二硒化钼;激子;带电激子;压电陶瓷;应力调控

中图分类号: O433.1

文献标识码: A

doi: 10.3788/gzxb20204906.0616002

Photoluminescence Spectrum of Monolayer MoSe₂ Tuned by Strain

LIAO Han^{1,2,4}, SHE Xiao-juan^{1,2}, TAO Lue^{1,2}, LI Yang^{1,2}, ZHANG Jia-xiang¹,
GAN Fu-wan^{1,2,3,4}, LIU Zhi^{1,4}

(1 Shanghai Institute of Microsystem and Information Technology, Chinese Academy of Sciences,
Shanghai 200050, China)

(2 University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

(3 Center of Materials Science and Optoelectronics Engineering, University of Chinese Academy of Sciences,
Beijing 100049, China)

(4 School of Physical Science and Technology, ShanghaiTech University, Shanghai 201210, China)

Abstract: In order to explore the potential of 2D materials in the application field of on-chip tunable active optical devices, a strain-tunable light source with monolayer MoSe₂ was produced. High quality monolayer MoSe₂ was obtained by micromechanical exfoliation method. The all-dry transfer method was used to transfer monolayer MoSe₂ to biaxial piezoelectric ceramics coated with 150 nm thick

基金项目:国家重点研发计划(No.2017YFA0206403),中国科学院战略性先导科技专项(No.XDB24020400),国家自然科学基金重点项目(No.61475180),上海市自然科学基金(No.16ZR1442600),上海市市级科技重大专项(No.2017SHZDZX03),上海市扬帆计划(No.18YF1428100),上海市青年科技启明星计划(No.19QA1410600),上海市优秀学术带头人计划(No.19XD1404600),中科院百人计划(No.Y82BRA1001)

第一作者:廖涵(1994—),女,硕士研究生,主要研究方向为单层二维材料的应力光学调控。Email: liaohan@mail.sim.ac.cn

导师(通讯作者):张加祥(1984—),男,研究员,博士,主要研究方向为量子光学和纳米材料。Email: jiaxiang.zhang@mail.sim.ac.cn

收稿日期:2020-01-20; **录用日期:**2020-03-23

<http://www.photon.ac.cn>

Polymethylmethacrylate. The electric field was applied to the biaxial piezoelectric ceramic, which converts the electrical signal into the strain signal, to control the optical properties of MoSe₂. The variation of intrinsic exciton and charge exciton peaks of the MoSe₂ with strain tuning were observed from photoluminescence spectra at low temperature of ~5 K. The results indicate that blueshifts of ~3.8 meV and ~3.7 meV appear in the intrinsic exciton and charge exciton peaks, respectively, when the strain is tuned from tension to compression. And increasing compressive strain or tensile strain will decrease the intensity of intrinsic exciton and charge exciton peak linearly. At the same time, the circular polarization degree of the emission related to the circular polarization of the pump laser also shows regular change with the variation of strain. This research confirms the close correlation between the strain tuning and the optical properties of monolayer MoSe₂. It provides support for the development of various on-chip tunable active optical devices based on 2D materials.

Key words: Nanostructured materials; Optoelectronic devices; Photoluminescence; MoSe₂; Exciton; Charge exciton; Piezoelectric ceramic; Strain tuning

OCIS Codes: 160.4670; 250.5230; 300.2530; 000.2658

0 引言

自单层石墨烯 2004 年被发现以来,科研界对二维材料进行了广泛的探索.其中,单层过渡金属硫化物(Transition Metal Dichalcogenides, TMDs)由于其直接带隙能带结构而被认为是一种极具潜力的光学材料^[1-3].价带电子在吸收一个能量大于禁带宽度的光子后跃迁至导带,与对应的价带空穴通过库伦力形成激子.直接带隙的能带结构导致大量激子发生自发辐射复合,展现了单层 TMDs 良好的光学特性^[4-6].单层 TMDs 在结构上打破了空间反演对称性,由此造成的能带自旋劈裂使得它的能带具备两个简并但不等价的能谷,它们具有相反的电、磁和光性质^[7-8].时间反转对称性要求自旋劈裂在 +K 和 -K 谷处具有相反的符号,从而在自旋和谷之间产生强耦合^[9-10].圆极化 σ+(σ-) 光子更偏向于在 +K (-K) 谷处选择性激发电子-空穴对^[11-13].可利用该特性对信号进行编码、处理和存储.由此,单层 TMDs 被认为是一种可供开发片上光源的新材料.

近些年,关于将量子点薄膜集成至片上,实现片上光源的研究已经取得了一定的进展,Je-Hyung kim 以及 Marcelo 的团队相继报道了利用砷化铟(InAs)量子点薄膜实现片上光源的相关工作^[14, 15].在他们的方案中,将量子点薄膜集成至片上的加工流程较为复杂,需要用到外延生长、高温键合、高精度刻蚀、微探针定点转移等多种工艺.这将大大降低产品良率,同时提高工艺成本.二维材料对应的片上集成工艺则简单许多,因其为柔性材料,转移步骤只需用到操作简便、成本低廉的聚二甲基硅氧烷(Polydimethylsiloxane, PDMS)干法转印^[16].

二维材料还具有高达 20% 的可拉伸性,且不会发生塑性形变,这为开发基于二维材料的片上可调器件提供了广阔的空间^[17].利用机械压力或局部热膨胀引起基板弯曲,进而应力调控二维材料是目前使用最多的引入应变场方法^[18-20],2015 年 HOSSEINI M 的团队报道了通过该方法应力调控二维材料能带结构,控制谷间声子散射,最终调控载流子迁移率的研究,利用此种特性可制备高性能应变仪^[18].但其在兼容其他成熟系统、实现大规模片上集成方面并不具备优势.压电陶瓷的压电性可以很好地保留在超薄结构中,通过结构加工可实现在施加较小电压的情况下产生相对较大的机械致动.这种特性对实现压电器件小型化、集成化具有非常重要的意义,促进了各类压电应用的发展.同时在硅衬底上外延生长高质量压电陶瓷薄膜的工艺也为完成压电器件与现有硅基集成芯片兼容一体化提供了良好的前景^[21].

本文主要介绍利用双轴铌镁酸铅钛酸铅压电陶瓷(PMN-PT)应力调控单层二硒化钼(MoSe₂)信号峰波长偏移、发光强度以及圆偏振度的实验,为开发各类基于二维材料的片上可调有源光学器件提供支持.

1 样品制备

石墨烯相关研究能够取得成功的关键之一是机械剥离法的应用.此方法简单易行,可以提供极高质量的样品^[22].使用 3M 胶带和 PDMS 薄膜对 MoSe₂ 进行机械剥离,得到如图 1(a) 所示样品.虚线框内为轮廓可见的单层 MoSe₂.单层 MoSe₂ 的直接带隙性质(与作为间接带隙半导体的多层 MoSe₂ 形成对比)使其具有很强的光致发光能力,因此根据光致发光光谱可以轻松地将单层与多层 MoSe₂ 区分开^[23].对其进行常温下光致

发光(Photoluminescence, PL)光谱测试,如图 1(b)所示(由于单层、双层 PL 信号峰强度差距过于悬殊,为了方便观察,将图 1 (b)中双层的 PL 信号峰强度扩大了五倍),测得单层 MoSe₂的 PL 信号峰波长为 800 nm,且强度远高于双层 MoSe₂波长为 822 nm 的 PL 信号峰,与文献[24]一致.图 1(b)中插图为测得的拉曼特征光谱,A_{1g}模式位于 241.1 cm⁻¹,E_{2g}模式位于 287.2 cm⁻¹,并且在 353 cm⁻¹处不存在明显的B_{2g}模式,与参考文献中单层 MoSe₂的拉曼特征光谱一致^[24, 25].根据以上测试结果可确认图 1(a)所示样品为单层 MoSe₂.

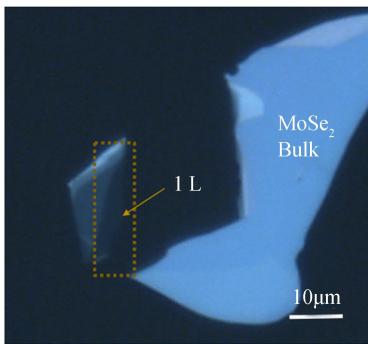
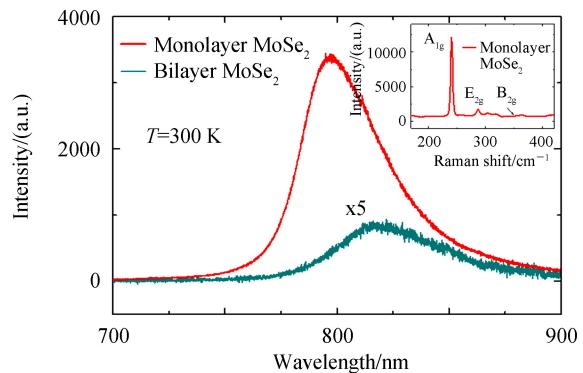
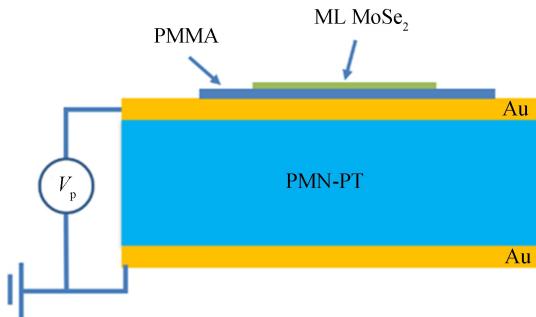
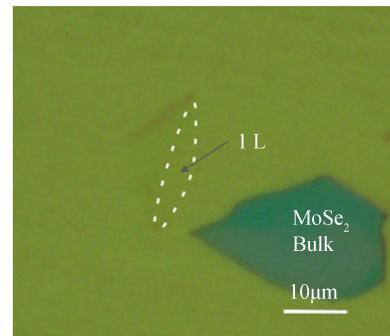
(a) Monolayer MoSe₂ on PDMS film before being transferred(b) PL spectra of monolayer and bilayer MoSe₂ at room temperature (The inset shows the Raman spectroscopy of monolayer MoSe₂ at room temperature)(c) Schematic diagram of monolayer MoSe₂ sample(d) Monolayer MoSe₂ was transferred on Polymethylmethacrylate

图 1 样品转移制备

Fig.1 The fabrication of transferred samples

此实验使用的目标转移基底为双面镀金的双轴 PMN-PT 压电陶瓷(尺寸为 3 mm×3 mm×0.302 mm),金作为正负电极.当沿 z 方向对其施加驱动电压时,压电陶瓷可对单层 MoSe₂在 x 方向提供面内应变 $\epsilon_{xx} = A \cdot d_{31} \cdot F_p$, y 方向提供面内应变 $\epsilon_{yy} = A \cdot d_{32} \cdot F_p$.其中 A 为样品应力传递效率, d_{31} 、 d_{32} 为压电系数, F_p 为施加在压电陶瓷上的电场强度.转移时,若基底材料表面平整,成功率可接近 100%.若使用表面较粗糙的基底材料,则单层 MoSe₂与基底之间的附着力下降,转移成功率将明显降低.因此,在镀金的压电陶瓷正面旋涂约 150 nm 厚的聚甲基丙烯酸甲酯(Polymethylmethacrylate, PMMA)来增加待转移表面的平整度,提高单层 MoSe₂转移成功率.涂胶形成的绝缘介质层还能有效防止单层 MoSe₂受到不必要的电荷干扰.

用于转移单层 MoSe₂的实验装置包括一台光学显微镜和一个六轴位移台.首先用显微镜在基底材料上找到一块适合转移(平坦,无杂质)的区域,再用六轴位移台夹住载有单层 MoSe₂的玻片,将其对准已确定的受体表面,缓慢压紧,使单层 MoSe₂粘附在基底表面.缓慢将 PDMS 薄膜剥离,最终单层 MoSe₂被释放在基底上.转移工艺的原理是基于 PDMS 的粘弹性:PDMS 在短时间内表现为弹性固体,而在较长时间范围内则可以实现缓慢流动剥离^[26].由此得到实验所需样品(示意图见图 1(c),光镜照片见图 1(d)).最后,将样品放置在氢氩混合气氛下,温度设置为 150℃,进行 90 min 热退火,以增强单层 MoSe₂与基底之间的范德华力,进一步提高应力传递效率,同时改善样品发光质量^[27].

2 测试

在器件正反面连接电极后,将其放置在温度可降至~5 K 的闭循环低温恒温器(MontanaFusionS100)

中。在闭循环低温恒温器温度降至 $\sim 5\text{ K}$ 且保持一段时间的稳定后,对样品进行测试。当对压电陶瓷施加正向驱动电压($F_p > 0$)时,传递到单层 MoSe_2 的面内应力为压应力,当对其施加负向驱动电压($F_p < 0$)时,传递到单层 MoSe_2 的面内应力为拉伸应力。使用自搭建的高分辨微区光致发光(Microphotoluminescence, $\mu\text{-PL}$)光谱测量系统对其进行测试,示意图如图 2(a)所示。左臂是连续波泵浦光输入端,可输入功率可调的线偏振泵浦光。随后,泵浦光经过位于样品台上方的起偏器改变偏振,通过倍率为 50、数值孔径为 0.42 的物镜聚焦(聚光斑小于 $1\text{ }\mu\text{m}$)打在样品表面。单层 MoSe_2 受泵浦光激发,电子吸收光子跃迁至导带,受库伦引力作用与价带对应空穴形成准粒子——激子。激子随后发生自发辐射,产生光子信号。信号光被物镜收集,经检偏器后通过长通滤波片滤除反射泵浦光,最终由聚光透镜传至焦长为 750 mm、最高分辨率小于 0.1 nm 的高分辨率光栅光谱仪(Princeton Instruments, SP-2750),并被硅 CCD 探测到并进行光谱分析。图 2(b)为未施加应力调控时光谱仪探测到的单层 MoSe_2 光致发光光谱,其中 X(本征激子态)信号峰与 X^* (带电激子态)信号峰分别位于 1.662 eV 和 1.631 eV,即 X^* 由于强库伦相互作用而具备约 31 meV 的结合能,与文献[28]相符。此外,该系统还配备了 XY 轴二维高精度纳米位移台,可利用软件对其进行控制。对单层 MoSe_2 进行二维空间扫描,得到的二维光谱扫描图像如图 2(c)所示,形状与图 1(a)所示单层部分相同,且其尺寸长约 $15\text{ }\mu\text{m}$,宽约 $4\text{ }\mu\text{m}$,表明仅单层材料部分才会发生明显的光致发光现象。

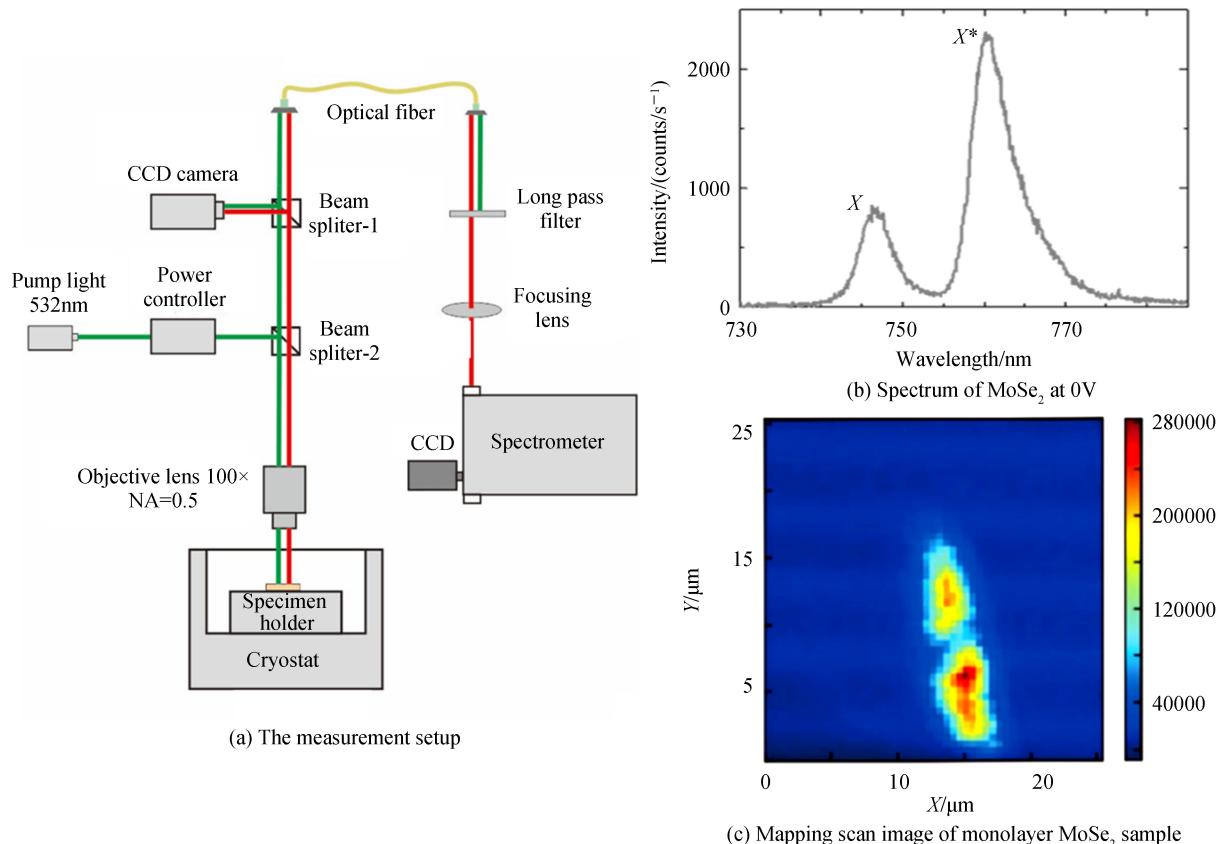


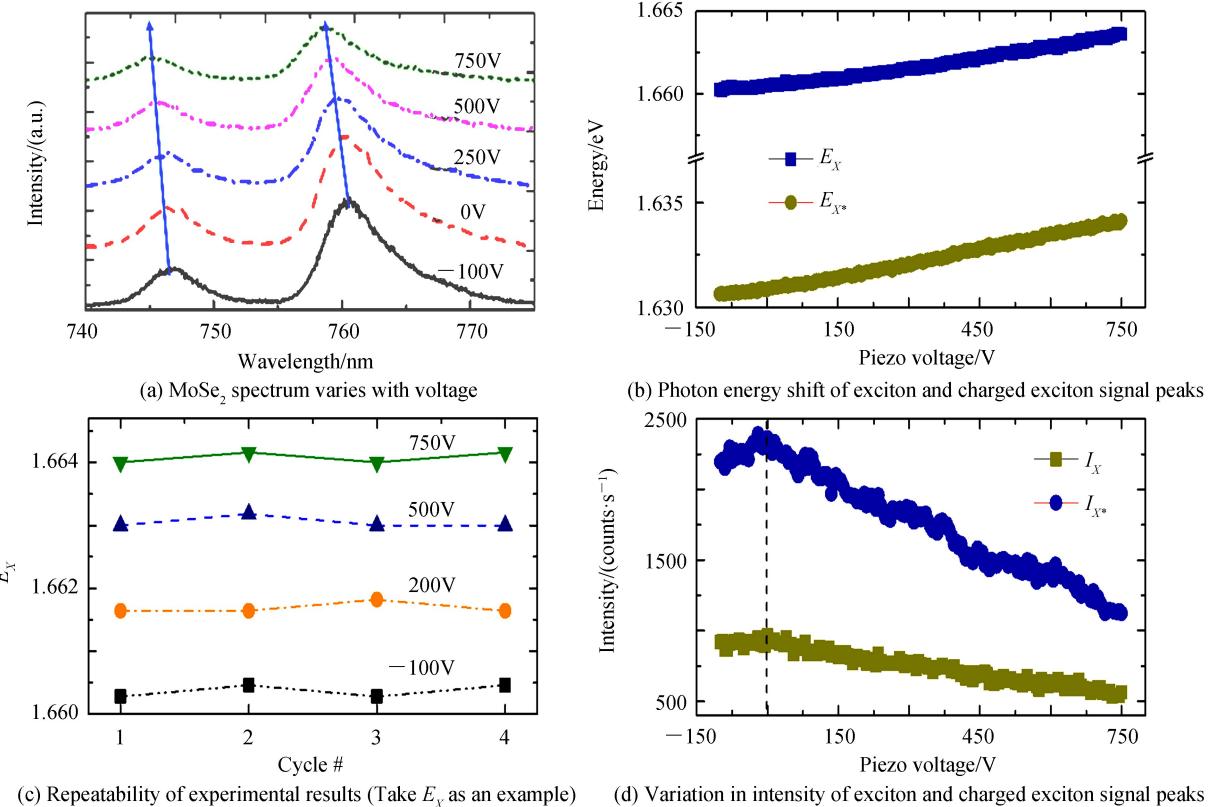
图 2 测试装置功能
Fig.2 Functions of the measurement setup

3 结果分析

3.1 应力调控单层 MoSe_2 信号光波长偏移及发光强度

使用 532 nm 固态连续波激光作为泵浦光,功率稳定在 $62\text{ }\mu\text{W}$ (功率小于 $100\text{ }\mu\text{W}$,保证样品不会损坏)[19]。在对压电陶瓷缓慢施加从 -100 V ($F_p = -3.3\text{ kV/cm}$) 到 750 V ($F_p = 24.8\text{ kV/cm}$) 驱动电压的过程中,传递到单层 MoSe_2 的面内应力由拉伸应力逐渐转变为压应力并缓慢增大。根据密度泛函理论(Density-Functional Theory, DFT),应力会对单层 MoSe_2 的能带结构产生影响。拉伸应力使直接带隙减小,压缩应力则使直接带隙增大[23]。如图 3(a)、(b) 所示,观察到 X 信号峰在驱动电压由 -100 V 升至 750 V 的过程中发

生蓝移,波长由 746.9 nm 偏移至 745.2 nm,实现了~1.7 nm(3.8 meV)的波长调节。 X^* 信号峰同样发生蓝移,波长由 760.5 nm 偏移至 758.8 nm,实现~1.7 nm(3.7 meV)的波长调节,与理论相符。实验观察到的波长偏移量小于 ISLAND J O 团队报道的偏移量^[23],分析原因主要有两个方面:1)本文是在低温下测试单层 MoSe₂发光性质与应力调控之间的关系,而低温是导致压电陶瓷压电响应较低的原因^[29];2)样品制作方法不同导致应力传递效率不同:ISLAND J O 制作的样品是将单层 MoSe₂直接转移在弯曲基板表面,并采用 PDMS 薄膜覆盖的方法增加应力传递效率,而在本实验中,当对压电陶瓷施加驱动电压时,面内应力需通过沉积在压电陶瓷表面的 100 nm 金以及 150 nm PMMA 隔离层,依靠范德华力传递至单层 MoSe₂,这种间接接触导致应力传递效率不高^[17]。

图 3 单层 MoSe₂样品测试结果Fig.3 The measurement result of monolayer MoSe₂

关于发光强度,实验结果表明:在驱动电压缓慢从-100 V($F_p = -3.3$ kV/cm)升至 0 V($F_p = 0$ kV/cm)的过程中,拉伸应力减小使得 X 信号峰光强由 919 counts 线性升至 968 counts, X^* 信号峰光强由 2 195 counts 线性升至 2 363 counts。而在驱动电压缓慢从 0 V($F_p = 0$ kV/cm)升至 750 V($F_p = 24.8$ kV/cm)的过程中,压缩应力增大使得 X 信号峰光强由 968 counts 线性降至 564 counts, X^* 信号峰光强由 2 363 counts 线性降至 1 123 counts。对 X 信号峰而言,光强随驱动电压线性增大的斜率与光强随驱动电压线性减小的斜率互为相反数,其绝对值约为 0.5 counts/V。 X^* 信号峰光强也存在相同的情况,斜率绝对值同约为 1.65 counts/V,如图 3(d)。由于应力与驱动电压呈线性关系,所以应力与 X、 X^* 信号峰光强也呈线性关系。分析认为 PL 信号峰强度的下降表明发光效率的下降。应力不仅改变了单层 MoSe₂的能带结构,而且对载流子态密度也有影响^[17]。压缩和拉伸应力具有对载流子态密度等效的调控效果;增大压缩和拉伸应力都会导致载流子态密度降低,由辐射复合发出的光子数也随之减少,PL 强度降低。

稳定性方面,对压电陶瓷重复多次施加-100 V($F_p = -3.3$ kV/cm)至 750 V($F_p = 24.8$ kV/cm)的驱动电压,得到的测试结果基本相同。以应力调控 X 信号峰的波长偏移 E_X 为例,如见图 3(c),在图中所示的四次重复试验中,相同电压对应的 X 信号峰的波长偏移量基本相同。这表明样品具有良好的机械稳定性,应力引起的单层 MoSe₂的性质变化是可重复的并且可以精确观察。

3.2 应力调控单层 MoSe₂信号光圆偏振度

为了使谷选择性更加明显,此阶段使用与信号光波长更为接近的 635 nm 连续波激光作为泵浦光,功率稳定在 70 μW.由于时间反演对称性以及单层 MoSe₂在结构上打破了空间反演对称性,+K、-K 能谷处的自旋能带劈裂方向相反^[30].如图 4(a)所示,线形代表每个能带中电子的自旋:虚线代表自旋向上,实线代表自旋向下.自旋和能谷之间产生强耦合,圆极化 $\sigma+$ ($\sigma-$)光子更倾向于在+K(-K)能谷处选择性激发电子-空穴对^[31].图 4(b)显示了当驱动电压为 750 V 时,由 $\sigma-$ 泵浦光激发产生的信号光中 $\sigma+$ 、 $\sigma-$ 部分的光强对比,注意到它们对应的峰值波长基本相等,表明应力调控使 $\sigma+$ 、 $\sigma-$ 信号峰同时蓝移,与文献[32]相符.定义圆偏振度 $P_c = (l_{co} - l_{cr}) / (l_{co} + l_{cr})$,其中 l_{co} 为信号光中与泵浦光同极化部分的光强, l_{cr} 为信号光中与泵浦光交叉极化部分的光强. P_{cs+} 、 P_{cs-} 分别为泵浦光圆极化为 $\sigma+$ 、 $\sigma-$ 时计算得到的 P_c ,且 $\Delta P_c = P_{cs-} - P_{cs+}$.

对压电陶瓷缓慢施加从 -100 V($F_p = -3.3$ kV/cm)到 750 V($F_p = 24.8$ kV/cm)驱动电压,实验观察到对 X 信号峰的圆偏振度 P_{cx} 而言,当驱动电压在 0 V 至 200 V 之间时, P_{cs+} 、 P_{cs-} 基本重合且稳定在 0.15 左右, ΔP_c 约等于 0.当驱动电压在 0 V 至 -100 V 之间时, P_{cs-} (P_{cs+})随拉伸应力增大而增大(减小),但幅度较小, ΔP_c 最高升至 0.0346.当驱动电压在 200 V 至 625 V 之间时, P_{cs-} (P_{cs+})随压应力增大而增大(减小), ΔP_c 最高升至 0.2268.当驱动电压在 625 V 至 750 V 之间时, P_{cs-} (P_{cs+})随压应力增大而减小(增大), ΔP_c 最低降至 0.1217,如图 4(c).

X^* 信号峰的圆偏振度 P_{cx}^* 也存在类似的情况,当施加在压电陶瓷的驱动电压在 0 V 至 320 V 之间时, P_{cs-} (P_{cs+})随压应力增大而小幅增大(小幅减小), ΔP_c 保持在 0.045 左右基本不变.当驱动电压在 0 V 至 -100 V 之间时, P_{cs-} (P_{cs+})随拉伸应力增大而增大(减小), ΔP_c 最高升至 0.1291.当驱动电压在 320 V 至 625 V 之间时, P_{cs-} (P_{cs+})随压应力增大而增大(减小), ΔP_c 最高升至 0.2546.当驱动电压在 625 V 至 750 V 之间时, P_{cs+} (P_{cs-})随压应力增大而减小(增大), ΔP_c 最低降至 0.093,如图 4(d).

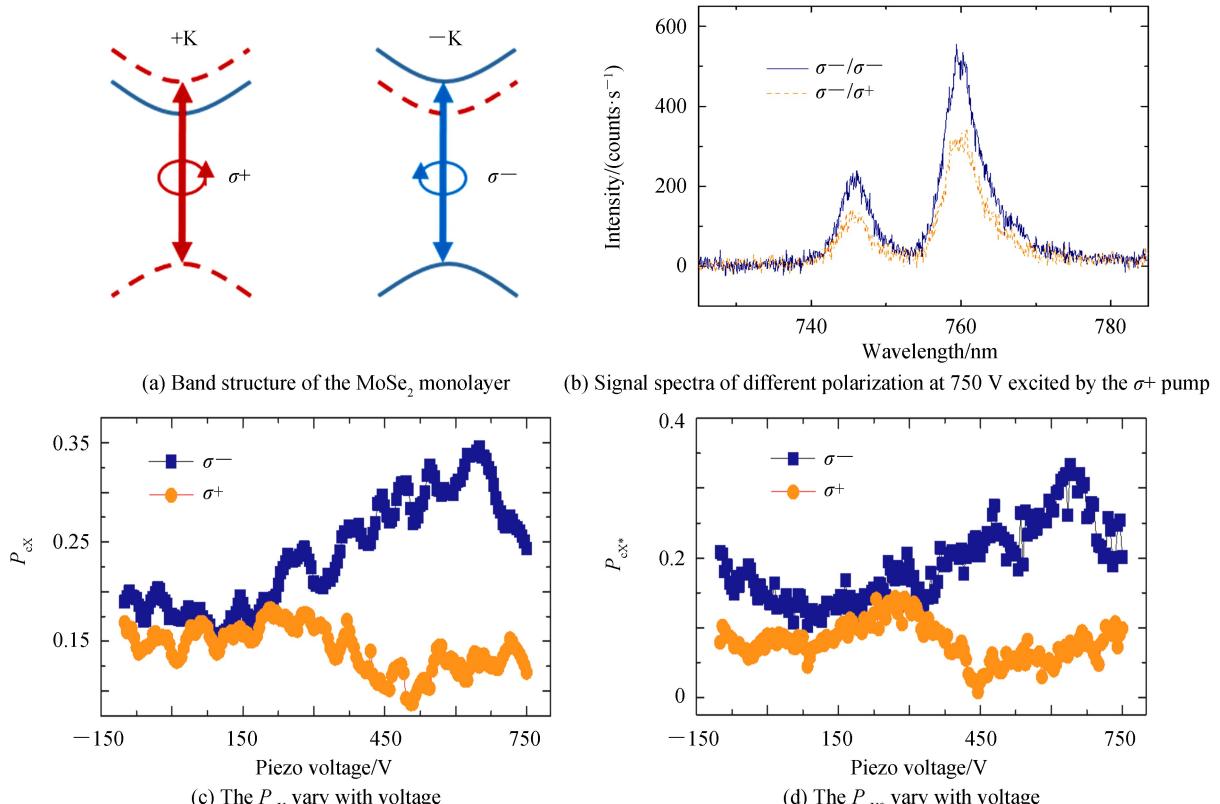


图 4 关于谷选择性激发现象的测试
Fig.4 The measurement of valley optical excitation phenomenon

由测试结果可见,圆偏振度 P_c 与应力调控之间也存在非常明显相关性.与对样品施加磁场利用塞曼效应^[31]调控圆偏振度 P_c 不同,应力调控使 +K、-K 能谷的直接带隙同时增大或缩小,表现为信号光中的

$\sigma+$ 、 $\sigma-$ 部分同时发生蓝移或红移,与文献[32]相符。由于能谷和自旋与晶体对称性密切相关,因此应力可通过改变晶体对称性对其进行调控。一定程度内,压缩或拉伸应力可以使得+K谷与 Γ 谷之间的间接跃迁增多,导致信号光中 $\sigma-$ 部分光强相对 $\sigma+$ 部分有所降低^[32]。表现为 $P_{\sigma-}$ ($P_{\sigma+}$)随应力增大而增大(减小)。但当压缩应力超过一定限度(对应驱动电压超过625 V)时,+K谷与 Γ 谷之间的间接跃迁就会有所下降。 $P_{\sigma+}$ 、 $P_{\sigma-}$ 变化规律如图4(c)、(d)所示。

4 结论

本文采用干法转印将由机械剥离法获得的单层MoSe₂定点转移至双面镀金双轴PMN-PT压电陶瓷上,转移前压电陶瓷正面需被涂一层150 nm厚PMMA作为隔离层,对其进行超低温(~ 5 K)光致发光测试,研究单层MoSe₂光谱的波长偏移、发光强度以及圆偏振度与应力调控之间的关系。

实验结果表明:对压电陶瓷缓慢施加从-100 V($F_p = -3.3$ kV/cm)到750 V($F_p = 25$ kV/cm)的驱动电压,使传递到单层MoSe₂的面内应力由拉伸应力逐渐转变为压应力并缓慢增大。此过程中,单层MoSe₂分别实现了X信号峰峰值蓝移3.8 meV、光强由919 counts(-100 V)升至968 counts(0 V)随后降至564 counts(750 V), X^* 信号峰峰值蓝移3.7 meV、光强由2 195 counts(-100 V)升至2 363 counts(0 V)随后降至1 123 counts(750 V)的变化。由于应力与驱动电压线性相关,波长偏移、发光强度也与驱动电压线性相关,所以单层MoSe₂信号峰的波长偏移以及发光强度与应力调控线性相关。同时,与泵浦光圆极化相关的圆偏振度 P_c 也随应力变化表现出规律性改变,应力调控可实现 ΔP_{cX} 最高0.226 8, ΔP_{cX^*} 最高0.254 6的变化。这些特性可用于开发信号编码、处理和存储相关的器件。

相比于利用机械压力或局部热膨胀引起基板弯曲来引入应力调控的方法,压电陶瓷更容易实现大规模片上集成。本次研究为实现将压电可调光源集成至现有硅基集成芯片,完成系统一体化提供一定的实验支持。

参考文献

- [1] GEIM A K, GRIGORIEVA I V. Van der Waals heterostructures [J]. *Nature*, 2013, **499**(7459): 419-425.
- [2] XU Xiao-dong, YAO Wang, XIAO Di, et al. Spin and pseudospins in layered transition metal dichalcogenides [J]. *Nature Physics*, 2014, **10**(5): 343-350.
- [3] JADCZAK J, BRYJA L, KUTROWSKA-GIRZYCKA J, et al. Room temperature multi-phonon upconversion photoluminescence in monolayer semiconductor WS₂ [J]. *Nature Communications*, 2019, **10**: 107.
- [4] YANG Min, XU Xiao-dong, DERY H, et al. Virtual trions in the photoluminescence of monolayer transition-metal dichalcogenides [J]. *Physical Review Letters*, 2019, **122**: 217401.
- [5] ROSENBERGER M R, CHUANG H J, MCCREARY K M, et al. Electrical characterization of discrete defects and impact of defect density on photoluminescence in monolayer WS₂ [J]. *ACS Nano*, 2018, **12**(2): 1793-1800.
- [6] ZHANG Y, CHANG T R, ZHOU Bo, et al. Direct observation of the transition from indirect to direct bandgap in atomically thin epitaxial MoSe₂ [J]. *Nature Nanotechnology*, 2014, **9**(2): 111-115.
- [7] CAO Ting, WANG Gang, HAN Wen-peng, et al. Valley-selective circular dichroism of monolayer molybdenum disulphide [J]. *Nature Communications*, 2012, **3**: 887-891.
- [8] JONES A M, YU Hong-yi, GHIMIRE N J, et al. Optical generation of excitonic valley coherence in monolayer WSe₂ [J]. *Nature Nanotechnology*, 2013, **8**(9): 634-638.
- [9] KIOSEOGLOU G, HANBICKI A T, CURRIE M, et al. Valley polarization and intervalley scattering in monolayer MoS₂ [J]. *Applied Physics Letters*, 2012, **101**(22): 221907.
- [10] MAK K F, HE K, SHAN J, et al. Control of valley polarization in monolayer MoS₂ by optical helicity [J]. *Nature Nanotechnology*, 2012, **7**(8): 494-498.
- [11] MAK K F, MCGILL K L, PARK J, et al. The valley hall effect in MoS₂ transistors [J]. *Science*, 2014, **344**(6191): 1489-1492.
- [12] SALLEN G, BOUET L, MARIE X, et al. Robust optical emission polarization in MoS₂ monolayers through selective valley excitation [J]. *Physical Review B*, 2012, **86**(8): 081301.
- [13] XIAO Di, LIU Gui-bin, FENG Wan-xiang, et al. Coupled spin and valley physics in monolayers of MoS₂ and other group-VI dichalcogenides [J]. *Physical Review Letters*, 2012, **108**(19): 196802.
- [14] KIM J H, AGHAEIMEIBODI S, RICHARDSON C J K, et al. Hybrid integration of solid-state quantum emitters on a silicon photonic chip [J]. *Nano Letters*, 2017, **17**(12): 7394-7400.
- [15] DAVANCO M, LIU J, SAPIENSA L, et al. Heterogeneous integration for on-chip quantum photonic circuits with

- single quantum dot devices [J]. *Nature Communications*, 2017, **8**(1): 889-911.
- [16] CASTELLANOS-GOMEZ A, BUSCEMA M, MOLENAAR R, *et al*. Deterministic transfer of two-dimensional materials by all-dry viscoelastic stamping [J]. *2D Materials*, 2014, **1**(1): 011002.
- [17] MARTÍN-SÁNCHEZ J, TROTTA R, MARISCAL A, *et al*. Strain-tuning of the optical properties of semiconductor nanomaterials by integration onto piezoelectric actuators [J]. *Semiconductor Science and Technology*, 2018, **33**(1): 013001.
- [18] HOSSEINI M, ELAHI M, POURFATH M, *et al*. Very large strain gauges based on single layer MoSe₂ and WSe₂ for sensing applications[J]. *Applied Physics Letters*, 2015, **107**(25): 253503.
- [19] CONLEY H J, WANG Bin, ZIEGLER J I, *et al*. Bandgap engineering of strained monolayer and bilayer MoS₂ [J]. *Nano Letters*, 2013, **13**(8): 3626-3630.
- [20] ROLDAN R, CASTELLANOS-GOMEZ A, CAPPELLUTI E, *et al*. Strain engineering in semiconducting two-dimensional crystals [J]. *Journal of Physics-condensed Matter*, 2015, **27**(31): 313201.
- [21] BAEK S H, PARK J, KIM D M, *et al*. Giant Piezoelectricity on Si for Hyperactive MEMS [J]. *Science*, 2011, **334**: 958-61.
- [22] NOVOSELOV K S, JIANG Z, ZHANG Y, *et al*. Room-temperature quantum Hall effect in graphene [J]. *Science*, 2007, **315**(5817): 1379.
- [23] ISLAND J O, KUC A, DIEPENDAAL E H, *et al*. Precise and reversible band gap tuning in single-layer MoSe₂ by uniaxial strain[J]. *Nanoscale*, 2016, **8**(5): 2589-2593.
- [24] TONNDORF P, SCHMIDT R, BOTTGER P, *et al*. Photoluminescence emission and Raman response of monolayer MoS₂, MoSe₂, and WSe₂[J]. *Optics Express*, 2013, **21**(4): 4908-4916.
- [25] LIU Bi-lu, FATHOI M, CHEN Liang , *et al*. Chemical vapor deposition growth of monolayer MoSe₂ nanosheets [J]. *ACS Nano*, 2015, **7**(4): 511-517.
- [26] MEITL M A, ZHU Zheng-tao, KUMAR V, *et al*. Transfer printing by kinetic control of adhesion to an elastomeric stamp [J]. *Nature Materials*, 2005, **5**(1): 33-38.
- [27] WIERZBOWSKI J, KLEIN J, SIGGER F, *et al*. Direct exciton emission from atomically thin transition metal dichalcogenide heterostructures near the lifetime limit [J]. *Scientific Reports*, 2017, **7**(1): 12383.
- [28] WANG G, PALLEAU E, AMAND T, *et al*. Polarization and time-resolved photoluminescence spectroscopy of excitons in MoSe₂ monolayers [J]. *Applied Physics Letters*, 2015, **106**(11): 112101.
- [29] HERKLOTZ A, PLUMHOF J D, RASTELLI A, *et al*. Electrical characterization of PMN-28%PT(001) crystals used as thin-film substrates [J]. *Applied Physics*, 2010 , **108**: 94101.
- [30] LIU Wen-chao, LUO Chao-bo, TANG Xu-dong, *et al*. Valleytronic properties of monolayer WSe₂ in external magnetic field [J]. *AIP Advances*, 2019, **9**(4): 045222.
- [31] SCHAIBLEY J R, YU H, CLARK G, *et al*. Valleytronics in 2D materials [J]. *Nature Reviews Materials*, 2016, **1**(11): 16055.
- [32] ZHU C R, WANG G, LIU B L,*et al*. Strain tuning of optical emission energy and polarization in monolayer and bilayer MoS₂[J]. *Physical Review B*, 2013, **88**: 121301(R).

Foundation item: National Key Research and Development Program of China (No.2017YFA0206403), Strategic Priority Research Program of Chinese Academy of Sciences (No. XDB24020400), National Natural Science Foundation of China (No. 61475180), Science and Technology Commission of Shanghai Municipality (No.16ZR1442600), Shanghai Municipal Science and Technology Major Project (No. 2017SHZDZX03), Shanghai Sailing Program (No.18YF1428100), Shanghai Rising-Star Program (No.19QA1410600), Program of Shanghai Subject Chief Scientist (No. 19XD1404600), One Hundred Person Project of the Chinese Academy of Sciences (No. Y82BRA1001)