文章编号: 1000-7032(2014)09-1019-08

氮掺杂发光碳纳米点的研究探索

曲松楠^{*}, 刘星元, 申德振

(发光学及应用国家重点实验室 中国科学院长春光学精密机械与物理研究所, 吉林 长春 130033)

摘要: 采用微波法制备了氮掺杂碳纳米点。通过调控碳纳米点中氮元素的掺杂含量和表面的化学环境, 实现了对碳纳米点发光特性的调控。在此基础上, 可实现完全基于氮掺杂碳纳米点的荧光墨水、比率型荧光探针及光泵浦激光。研究目的在于探索氮掺杂碳纳米点的发光机理, 揭示影响碳纳米点荧光量子效率的因素及其在生物成像、传感、防伪、信息存储、激光等领域的应用。

关键词: 碳纳米点; 氮掺杂; 荧光墨水; 荧光探针; 激光

中图分类号: O482.31 文献标识码: A DOI: 10.3788/fgxb20143509.1019

Studies on Nitrogen-doped Carbon Nanodots

QU Song-nan^{*}, LIU Xing-yuan, SHEN De-zhen

(State Key Laboratory of Luminescence and Applications, Changchun Institute of Optics, Fine Mechanics and Physics, Chinese Academy of Sciences, Changchun 130033, China)

^{*} Corresponding Author, E-mail: qusn@ciomp.ac.cn

Abstract: Nitrogen-doped carbon nanodots are emerging stars in carbon-based nanomaterials. Herein, we introduce our works on nitrogen-doped nanodots, which were prepared through one-step microwave synthesis route. Our works demonstrated that the optical properties of the carbon nanodots can be modulated by nitrogen doping concentrations and surface chemical environments, and realize carbon-nanodot-based fluorescent inks, ratiometric fluorescent nanosensor and optical pumped laser. Our studies aim at exploiting the luminescent mechanism of the nitrogen-doped carbon nanodots, revealing the influencing factors on their luminescent quantum yields and their applications in bioimaging, sensing security, information storage, lasers and so on.

Key words: carbon nanodots; nitrogen doping; fluorescent ink; fluorescent nanosensor; laser

1 引 言

碳基材料被誉为后摩尔时代延续硅基材料的重点材料,每一种碳基材料的诞生都会带来一种或多种新型、高性能的碳基光电器件,都会掀起国际上的研究热潮。碳纳米材料,如碳纳米管、富勒烯、石墨烯等,都具有卓越的电学特性或机械特

性。2004年,美国南卡罗莱纳大学 Scrivens 课题组在激光轰击碳纳米管时发现了具有发光特性的碳纳米粒子^[1]。2006年,美国克莱蒙森大学 Sun 课题组基于激光消融碳靶物的多步处理方法,得到发光性能较好的碳纳米粒子,并首次称其为碳点(Carbon dots, CDs)^[2]。大量研究表明:发光碳纳米点具有化学稳定性好、无光闪烁、耐光漂、无

收稿日期: 2014-06-03; 修订日期: 2014-07-16

基金项目: 国家自然科学基金面上项目(61274126); 国家自然科学基金面上项目青年基金项目(51103144); 吉林省科技发展计划(20140101060JC); 发光学及应用国家重点实验室重大创新项目资助

毒、生物相容性优异等优点^[3],有望代替光稳定性较弱的有机染料和存在潜在毒性的含有重金属内核的无机量子点,应用于生物、传感、防伪、信息存储、激光等领域。此外,发光碳纳米点还有原料广泛、制备成本低和环保等优点,被看做是继富勒烯和石墨烯两种获得诺贝尔奖的碳纳米材料之后又一类重要的碳纳米材料。

高的荧光量子效率是碳纳米点具有实际应用的前提条件。无杂元素掺杂、无表面钝化剂修饰的碳纳米点表现出较低的荧光发射(荧光量子效率 $<5\%$)。为了获得增强的荧光,通常需以聚合物链或长烷基链作为表面钝化剂修饰到碳纳米点表面。修饰的聚合物链或长烷基链具有绝缘性,不利于在光电器件中应用。近期实验表明,氮元素掺杂后的碳纳米点可表现出增强的荧光特性。目前国际上报道的最高荧光量子效率的碳纳米点均为氮掺杂碳纳米点^[4-5]。因此,开发新型氮掺杂碳纳米点,并揭示其发光特性及应用变得尤为重要。本文介绍了我们在氮掺杂碳纳米点方面的研究工作,目的在于探索氮掺杂碳纳米点的发光机理,揭示影响其荧光量子效率的因素及其在生物、传感、防伪、信息存储、激光等领域的应用。

2 氮掺杂碳纳米点的制备及性能研究

2.1 氮掺杂碳纳米点的制备

微波热解法是制备碳纳米点的一种快速、有

效的方法。我们以柠檬酸为碳源,以尿素或氨水为氮源,通过调控反应物中氮源与柠檬酸的比例,通过微波法一步制备出氮元素掺杂、表面生物相容性基团修饰的、具有不同发光特性的碳纳米点。

将 2 g 柠檬酸与尿素按照 5:1、1:1、1:2 的质量比分别溶解在 20 mL 水中。然后将这 3 种柠檬酸与尿素的水溶液分别放置到微波炉内,在 700 W 的功率下微波加热 4 min,获得棕黑色固体。将产物放入真空烘箱中,在 60 °C 下放置 1 h,除去残留的小分子化合物。将处理后的棕黑色固体溶于 100 mL 水中,经过离心处理(3 000 r/min, 20 min),获取上清液,烘干后,得到 3 种不同氮掺杂含量的碳纳米点,即碳纳米点 1(原料中柠檬酸与尿素质量比为 5:1)、碳纳米点 2(原料中柠檬酸与尿素质量比为 1:1)、碳纳米点 3(原料中柠檬酸与尿素质量比为 1:2)。将 2 g 柠檬酸溶解到 20 mL 氨水中,通过上述制备方法,可制备碳纳米点 4。

2.2 形貌及化学结构表征

碳纳米点形貌及化学结构的研究是探索碳纳米点发光机理的前提。我们通过透射电镜和原子力显微镜等方法对所制备的碳纳米点粒径分布进行表征。以碳纳米点 3 为例:原子力显微镜结果表明,碳纳米点 3 尺寸在 1 ~ 20 nm 之间(图 1(a));高分辨透射电镜图片中间距为 0.32 nm 的衍射条纹表明,碳纳米点 3 的内核为石墨结构(图 1(b));X 射线光电子能谱证明,所制备的碳

图 1 碳纳米点 3 的原子力显微镜照片 (a)、高分辨透射电镜照片 (b)、X 射线光电子能谱 (c) 和红外光谱 (d)。

Fig. 1 AFM image (a), HRTEM image (b), XPS (c), and IR spectra (d) of carbon nanodots 3, respectively.

纳米点由 C、N、O 元素构成(图 1(c)), N 元素掺杂到了碳纳米点内核中;红外光谱表明,所制备的碳纳米点表面含有羧基和尿素基团(图 1(d)),这些基团可增加氮掺杂碳纳米点在水中的溶解性。

2.3 生物毒性研究

无毒是一类材料能够在现实生活中应用的前提条件。我们对所制备的氮掺杂碳纳米点进行了动物实验和植物实验。动物试验中,20 只大白鼠平均分成两组,其中一组只饮用所制备的氮掺杂碳纳米点水溶液(0.7 mg/mL),另一组作为参照组饮用普通水。实验中,大白鼠主动饮用氮掺杂碳纳米点水溶液,饮用 5 周后,所有大白鼠都存

活,其外观、活动状况与参照组的大白鼠没有明显区别。在饮用氮掺杂碳纳米点水溶液的大白鼠的尿液中,检测到了所制备氮掺杂碳纳米点的荧光信号(图 2(a))。大白鼠停止饮用氮掺杂碳纳米点水溶液,并改为饮用普通水 5 周后,在其尿液中未检测到所制备氮掺杂碳纳米点的荧光信号(图 2(b)),表明所制备的氮掺杂碳纳米点可经泌尿系统代谢体外。植物试验中,将绿豆种子浸泡到所制备的氮掺杂碳纳米点水溶液(1.5 mg/mL)中,绿豆种子正常发育,并生长成为具有荧光特性的豆芽(图 2(c))。以上实验证明:所制备的氮掺杂碳纳米点对动物体和植物体无毒或低毒,可安全地应用到日常生活中^[6]。

图 2 (a) 大白鼠饮用氮掺杂碳纳米点水溶液 5 周后的尿液在不同波长激发下的荧光光谱; (b) 大白鼠停止饮用氮掺杂碳纳米点水溶液 5 周后的尿液在不同波长激发下的荧光光谱; (c) 在氮掺杂碳纳米点水溶液中生长的豆芽在不同波长光照射下的照片(从左至右:白光,紫外光,蓝光,绿光)。

Fig. 2 (a) Fluorescence spectra excited by various wavelengths of the rat urine after drinking the carbon nanodots water solution for five weeks. (b) Fluorescence spectra excited by various wavelengths of the rat urine after stopping drink the carbon nanodots water solution for five weeks. (c) Photos of the bean sprouts growing in the carbon nanodots water solution under various light irradiation (from left to right: white, UV, blue, green).

2.4 氮掺杂碳纳米点的发光特性

只以柠檬酸为原料(反应物中无含氮元素化合物),通过相同方法制备的碳纳米点表现出弱的蓝色荧光发射,最大荧光量子效率仅为 3%。原料中加入尿素或氨水后,所制备的碳纳米点的荧光特性明显增强。碳纳米点 1、碳纳米点 2、碳

纳米点 3 在水溶液中的光谱特性如图 3 所示。低氮含量掺杂的碳纳米点(碳纳米点 1)的主吸收谱带在紫外波段,表现出蓝光发射。增加氮元素的掺杂含量,可使碳纳米点的主吸收峰位出现在 410 nm,并表现出绿光发射。氮元素最大掺杂含量可达 30%,碳纳米点 3 表现为纯绿光发射,表

明氮元素的掺杂含量可影响碳纳米点的发光特性。通过调控氮元素的掺杂含量,可获得具有蓝色和绿色发光特性的碳纳米点。以氨水作为氮源

制备的碳纳米点 4 具有较大的粒径分布(2 ~ 60 nm),其中小尺寸的碳纳米点表现为蓝光发射,大尺寸碳纳米点表现为绿光发射。

图 3 碳纳米点 1、碳纳米点 2、碳纳米点 3 的吸收光谱 (a) 碳纳米点 1 溶液 (b)、碳纳米点 2 溶液 (c) 和碳纳米点 3 溶液 (d) 在不同激发波长下的发射光谱。

Fig. 3 Absorption spectra of carbon nanodots 1, 2, 3 (a), and emission spectra of carbon nanodots 1 solution (b), carbon nanodots 2 solution (c), carbon nanodots 3 solution (d) under various wavelengths excitation.

3 氮掺杂碳纳米点的应用

3.1 氮掺杂碳纳米点荧光墨水

所制备的氮掺杂碳纳米点表面含有大量的羧基、尿素基团,这些基团具有生物相容性,可使碳纳米点选择性地分散吸附在生物产品(如纸、皮肤、羽毛等)上,并表现出激发波长依赖的、增强的荧光发射。在无机制品和人工合成产品表面,这些生物相容性的基团会促使碳纳米点发生聚集,导致荧光猝灭。利用该性质,可快速、准确地鉴别生物制品和化工制品(图 4(a)~(f))。利用所制备碳纳米点激发波长依赖的特性,与有机染料(无激发波长依赖特性)配合,可在生物制品上构筑具有信息加密的图形(图 4(g)、(h))。以上实验证明,所制备的碳纳米点可作为一种新型的荧光墨水,可安全地应用到现实生活中^[6]。

3.2 氮掺杂碳纳米点比率型荧光探针

碳纳米点在生物和环境领域中的一个重要应

用是将其作为荧光探针。传统荧光探针是以单一荧光基团的荧光强度作为表征参数,其结果的精确性易受仪器因素及参照样品的影响,误差较大。比率型荧光探针是通过测量探针材料两个发射峰处的荧光强度,以其比值作为信号参量,从而来测定目标物的分析方法,具有准确性好、灵敏度高等优点,是目前荧光探针的主流。已报道的基于碳纳米点的比率型荧光探针是将碳纳米点与有机发光材料^[7]或无机量子点^[8]共价结合。这种方法会引入有机发光材料光稳定性差和无机量子点存在潜在毒性的问题,没有发挥出碳纳米点的优势。

我们的实验表明,通过调控碳纳米点中氮元素的掺杂比例和表面尿素基团的含量,可以调控碳纳米点在蓝光和绿光波段的发射。碳纳米点 2 水溶液在 380 nm 激发时可表现出双荧光发射,且两个荧光发射峰的荧光寿命各不相同,表明为不同的激发态过程(图 5(a)、(b))。利用表面尿素基团在不同外界因素诱导下形成不同的键合状态,

图 4 棉纤维(上)与尼龙纤维(下)未沾染碳纳米点的光学照片(a)、蓝光(c)和绿光(e)激发下的荧光照片;棉纤维(上)与尼龙纤维(下)沾染碳纳米点的光学照片(b)、蓝光(d)和绿光(f)激发下的荧光照片。碳纳米点墨水与商用有机绿光墨水在纸上书写的数字在蓝光(g)和绿光(h)激发下的荧光图片。

Fig. 4 Optical photograph (a), fluorescent images under blue light (c) and green light (e) of cotton fibers (up) and nylon fibers (down) without carbon nanodots infecting. Optical photograph (b), fluorescent images under blue light (d) and green light (f) of cotton fibers (up) and nylon fibers (down) with carbon nanodots infecting. Fluorescent images under blue light (g) and green light (h) of the numbers writing on paper using carbon nanodots ink and commercial organic green ink.

图 5 (a) 碳纳米点 2 水溶液在 380 nm 激发下的发射光谱(黑实线)、监测 455 nm 的激发谱(黑短线)和监测 520 nm 的激发谱(黑点线);(b) 碳纳米点 2 水溶液的 455 nm 与 520 nm 处的荧光衰减曲线;(c) 碳纳米点 2 水溶液加入不同金属离子(50 μ m)后在 380 nm 激发下的发射光谱;(d) 455 nm 与 520 nm 处发光峰强度比率值的柱状图。

Fig. 5 (a) Emission spectra under 380 nm excitation (solid line), excitation spectra monitoring 455 nm (short-term line) and 520 nm (long-term line) of carbon nanodots 2 water solution. (b) Fluorescence decay curves of 455 nm and 520 nm. (c) Emission spectra under 380 nm excitation of carbon nanodots 2 after adding various metal ions (50 μ m). (d) Intensity ratio of blue/green of of carbon nanodots 2 water solution related to different metal ions.

进而影响碳纳米点双荧光发射峰强度的相对变化,以此可构筑完全基于碳纳米点的比率型荧光

探针。所制备的碳纳米点比率型荧光探针在溶液体系可精确识别温度、pH 值、Fe³⁺ 浓度(>0.04

$\mu\text{mol/L}$), 揭示其在生物成像、医疗检测、环境监测等领域中具有潜在应用^[9]。

3.3 氮掺杂碳纳米点绿光波段激光

碳纳米点进一步发展所必须解决的问题是要揭示其发光机理。目前, 碳纳米点发光机理存在很大争议, 一部分人认为是本征发光(空穴-电子对复合发光), 另一部分人认为是表面缺陷发光。表面缺陷发光, 意味着发光特性很难掌控, 发光过程为能量耗散过程, 不利于高性能光电器件及激光器件的制备。已报道的具有蓝光发射的碳纳米点具有明显的吸收谱带, 发光动力学研究和理论计算结果证实其蓝光发射为本征发光, 并可以实现蓝光波段的激光^[10]。一些报道的具有绿光发射的碳纳米点则没有明显的吸收谱带, 绿光谱段的荧光寿命长于蓝光谱段的荧光寿命, 被认为是

表面缺陷发光^[11]。

在我们的实验中, 随着氮元素掺杂含量的增加, 可以得到具有纯绿光发射的碳纳米点(碳纳米点 3)。碳纳米点 3 在深蓝光波段表现出明显的吸收谱带(峰值 410 nm), 且其吸收谱带和发射谱带重叠最小, 自吸收少, 有利于光增益。碳纳米点 3 的激发态过程依赖于溶剂环境。在乙醇和水的混合溶剂中, 可进一步降低光损耗, 提高荧光量子效率, 并观测到放大自发辐射现象(图 6(a))。以碳纳米点 3 制备的基于平型腔结构的光泵浦激光器件实现了绿光波段碳纳米点激光(发散角小于 2 mrad)(图 6(b)~(d))。比实验证实碳纳米点 3 的光稳定性优于传统有机激光染料(图 6(e))。这些结果预示氮元素掺杂碳纳米点可成为一种新型的激光材料, 有助于理解碳纳米点的发

图 6 (a) 碳纳米点 3 乙醇溶液在不同泵浦强度下的发射光谱; (b) 碳纳米点 3 的激光光谱和阈值曲线; (c) 碳纳米点 3 的激光远场光斑; (d) 碳纳米点 3 的激光强度随偏振方向变化的曲线; (e) 碳纳米点 3 与有机激光染料在相同强度激光照射下, 发光峰强度随时间变化的曲线。

Fig. 6 (a) Emission spectra of carbon nanodots 3 ethanol solution under different pumping intensity. (b) Laser spectrum and threshold curve of carbon nanodots 3. (c) Far field laser spot. (d) Laser intensity vs. polarization direction. (e) Luminescence intensity vs. time of carbon nanodots 3 and organic laser dye under the same intensity laser irradiation.

光机理^[12]。

3.4 影响碳纳米点荧光量子效率的因素

高荧光量子效率是决定碳纳米点应用的关键。以氨水为氮源制备的碳纳米点 4 水溶液的荧

光量子效率为 24%。经过高速离心除去大尺寸具有绿光发射的碳纳米点后, 得到的小尺寸蓝光碳纳米点可表现出增强的荧光量子效率(39%)。动力学研究表明: 不同尺寸、不同发光

特性的碳纳米点之间存在能量传递过程,小尺寸蓝光碳纳米点可作为能量给体,大尺寸绿光碳纳米点可作为能量受体,分离提纯后可获得增强的荧光发射。另外,我们的实验表明碳纳米点的荧光发射强度依赖于溶剂的粘度,在高粘度的溶液环境,其荧光量子效率可进一步增强(图7)。当碳纳米点4有效地分散到聚合物基质中时,可以获得荧光量子效率高达90%以上的发光薄膜,为基于碳纳米点高荧光量子效率材料的制备提供了一种研究方法^[13]。

图7 小尺寸碳纳米点4在不同粘度体系下的荧光量子效率柱状图(GWF:胶水薄膜),内插图小尺寸碳纳米点4胶水溶液在玻璃基片上书写的荧光图案。

Fig.7 Fluorescence quantum efficiency histogram of minisize carbon nanodots 4 in different viscosity system (GWF: gum water film). Inset is the fluorescence image writing on glass substrate using minisize carbon nanodots 4 solution.

4 结论与展望

发光碳纳米点作为一种新兴的纳米发光材料以其独特魅力引起了国际上的广泛关注。本文介绍了一种以尿素或氨水为氮源、以柠檬酸为碳源、发光特性可调控的氮掺杂碳纳米点的微波制备方法。氮元素掺杂可增强碳纳米点的荧光量子效率。通过调控氮元素的掺杂含量,可获得在蓝光和绿光波段具有较高荧光量子效率的碳纳米点。生物毒性试验证实,所制备的氮掺杂碳纳米点对动物和植物无毒或低毒,可作为一种新型的荧光墨水安全地应用到日常生活中,并且在生物产品鉴定、信息存储及防伪方面有广泛的应用。优化氮元素的掺杂含量,可制备具有双荧光发射特性的碳纳米点,以此构筑比率型荧光探针,在溶液体系可精确识别温度、pH值、Fe³⁺浓度(>0.04 μmol/L)。高氮含量掺杂时,可制备具有纯绿光发射的碳纳米点。在其乙醇水溶液中存在放大自发辐射现象,基于平型腔结构可实现绿光波段的光泵浦激光。不同发光特性的碳纳米点间存在能量传递现象,优化分离后可获得具有增强发光特性的碳纳米点。在高粘度体系下,碳纳米点的荧光量子效率能够被进一步增强。以上结果预示氮掺杂碳纳米点作为一种新型碳基纳米材料,将在生物成像、传感、激光、光电器件、光伏器件等多领域有广泛的应用。

参 考 文 献:

- [1] Xu X, Ray R, Gu Y, *et al.* Electrophoretic analysis and purification of fluorescent single-walled carbon nanotube fragments [J]. *J. Am. Chem. Soc.*, 2004, 126(40): 12736-12737.
- [2] Sun Y P, Zhou B, Lin Y, *et al.* Quantum-sized carbon dots for bright and colorful photoluminescence [J]. *J. Am. Chem. Soc.*, 2006, 128(24): 7756-7757.
- [3] Baker S N, Baker G A. Luminescent carbon nanodots: Emergent nanolights [J]. *Angew. Chem. Int. Ed.*, 2010, 49(38): 6726-6744.
- [4] Xie Z, Wang F, Liu C. Organic-inorganic hybrid functional carbon dot gel glasses [J]. *Adv. Mater.*, 2012, 24(13): 1716-1721.
- [5] Zhu S, Meng Q, Wang L, *et al.* Highly photoluminescent carbon dots for multicolor patterning, sensors, and bioimaging [J]. *Angew. Chem. Int. Ed.*, 2013, 52(14): 3953-3957.
- [6] Qu S N, Wang X Y, Lu Q P, *et al.* New type of biocompatible fluorescent ink based on water-soluble luminescent carbon nanodots [J]. *Angew. Chem. Int. Ed.*, 2012, 51(49): 12215-12218.
- [7] Shi W, Li X H, Ma H M. A tunable ratiometric pH sensor based on carbon nanodots for the quantitative measurement of the intracellular pH of whole cells [J]. *Angew. Chem. Int. Ed.*, 2012, 51(26): 6432-6435.
- [8] Zhu A, Qu Q, Shao X, *et al.* Carbon-dot-based dual-emission nanohybrid produces a ratiometric fluorescent sensor for *in*

in vivo imaging of cellular copper ions [J]. *Angew. Chem. Int. Ed.*, 2012, 51(29): 7185-7189.

- [9] Qu S N, Chen H, Zheng X M, *et al.* Ratiometric fluorescent nanosensor based on water soluble carbon nanodots with multiple sensing capacities [J]. *Nanoscale*, 2013, 5(12): 5514-5518.
- [10] Zhang W F, Zhu H, Yu S F, *et al.* Observation of lasing emission from carbon nanodots in organic solvents [J]. *Adv. Mater.*, 2012, 24(17): 2263-2267.
- [11] Liu F, Jang M, Ha H D, *et al.* Facile synthetic method for pristine graphene quantum dots and graphene oxide quantum dots: Origin of blue and green luminescence [J]. *Adv. Mater.*, 2013, 25(27): 3657-3662.
- [12] Qu S N, Liu X Y, Guo X Y, *et al.* Amplified spontaneous green emission and lasing emission from carbon nanoparticles [J]. *Adv. Funct. Mater.*, 2014, 24(18): 2689-2695.
- [13] Qu S N, Shen D Z, Liu X Y, *et al.* Highly luminescent carbon-nanoparticle-based materials: Factors influencing photoluminescence quantum yield [J]. *Part. Part. Syst. Charact.*, 2014, DOI: 10.1002/ppsc.201400055.

曲松楠(1981-)男,吉林长春人,2004年于吉林大学材料科学与工程学院获得学士学位,同年保送吉林大学材料科学与工程学院材料物理与化学专业硕博连读,2009年获得博士学位。2009年进入中国科学院长春光学精密机械与物理研究所工作,2011年晋升为副研究员。研究内容主要为发光碳纳米点机理及其应用,新型有机光电功能材料及器件的制备。在 *Angew. Chem. Int. Ed.*, *Adv. Funct. Mater.*, *Nanoscale*, *Chem. Mater.*, *Chem. Commun.*, *Chem. Eur. J.*, *J. Mater. Chem.*, *Langmuir* 等国际学术刊物上发表第一作者 SCI 论文 15 篇,累计发表 SCI 论文 30 余篇, H 因子 11。作为项目负责人承担国家自然科学基金面上项目、青年基金项目各一项,吉林省科技发展计划面上项目、青年基金项目各一项。2013 年,获得发光学及应用国家重点实验室重大创新项目“荧光碳纳米点发光机理及应用”经费 200 万元资助。2013 年获得第九届吉林省“长白青年科技奖”优秀奖。2014 年,获得首批“中国科学院卓越青年科学家”项目经费 240 万元资助。

E-mail: qusn@ciomp.ac.cn

代表性论文:

1. Songnan Qu, Xingyuan Liu, Xiaoyang Guo, Minghui Chu, Ligong Zhang, and Dezhen Shen. Amplified spontaneous green emission and lasing emission from carbon nanoparticles. *Adv. Funct. Mater.*, 2014, 24: 18 (IF: 9.7).
2. Songnan Qu, Hong Chen, Xuanming Zheng, Junsheng Cao and Xingyuan Liu. Ratiometric fluorescent nanosensor based on water soluble carbon nanodots with multiple sensing capacities. *Nanoscale*, 2013, 5: 5514 (IF: 6.23).
3. Songnan Qu, Xiaoyun Wang, Qipeng Lu, Xingyuan Liu, and Lijun Wang. New type of biocompatible fluorescent ink based on water-soluble luminescent carbon nanodots. *Angew. Chem. Int. Ed.*, 2012, 51: 12215 (IF: 13.45).
4. Songnan Qu, Qipeng Lu, Shaohang Wu, Lijun Wang and Xingyuan Liu. Two dimensional directed p-p interactions in a linear shaped bi-1,3,4-oxadiazole derivative to achieve organic single crystal with highly polarized fluorescence and amplified spontaneous emissions. *J. Mater. Chem.*, 2012, 22: 24605 (IF: 5.97).
5. Songnan Qu, Yantao Li, Lijun Wang, Qipeng Lu, Xingyuan Liu. Waveguide and ultralow-threshold amplified spontaneous emission in aligned ordered solid state based on highly fluorescent twin-tapered Bi-1,3,4-oxadiazole derivative. *Chem. Commun.*, 2011, 47: 4207 (IF: 6.17).