

一种复合掺杂方式对石墨烯载流子浓度的调制

唐静, 范晓东, 曾长淦

(中国科学技术大学物理系, 安徽合肥 230026)

摘要: 石墨烯显著的优点是其载流子浓度极易调控. 目前已经发展出很多载流子浓度调控方法, 其中栅压调节是应用最广的一种手段. 但是在实际应用中, 栅压也有一定的局限性. 例如一些设计电路、测试仪器并不能承受几十甚至上百伏的高压. 最近出现一种电子束辐照掺杂的方式, 可以局域、连续地调控石墨烯载流子浓度, 但调控范围较小. 这里应用硝酸掺杂结合电子束辐照的复合方式, 实现了石墨烯载流子浓度的大范围、连续调控. 通过分析扫描近场光学显微镜和电输运测试结果, 发现此复合方式可以将石墨烯载流子浓度从 $2.15 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ 调控至 $-1.49 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$, 效果相当于常用的 300 nm 二氧化硅介电层 320 V 的栅压变化. 另外, 通过电子束曝光可以将石墨烯加工成预设的电子图案. 这种简单、高效的复合掺杂方式有着非常广泛的应用前景.

关键词: 电子束照射; 硝酸掺杂; 局域掺杂; 复合掺杂; 载流子浓度

中图分类号: O469

文献标识码: A

doi: 10.3969/j.issn.0253-2778.2020.06.017

引用格式: 唐静, 范晓东, 曾长淦. 一种复合掺杂方式对石墨烯载流子浓度的调制[J]. 中国科学技术大学学报, 2020, 50(6): 839-843.

TANG Jing, FAN Xiaodong, ZENG Changgan. Modulation of graphene carrier density by a mixed doping route[J]. Journal of University of Science and Technology of China, 2020, 50(6): 839-843.

Modulation of graphene carrier density by a mixed doping route

TANG Jing, FAN Xiaodong, ZENG Changgan

(Department of Physics, University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China)

Abstract: Graphene has a significant advantage that its carrier density can be easily tuned. Various methods for controlling carrier density have been proposed, of which gate tuning is the most widely used. However, in practical applications, gate tuning also has some limitations. For example, some designed circuits and test instruments cannot stand high voltages over hundreds or even tens of volts. Recently, a method of doping with electron beam irradiation has appeared, which can change graphene carrier density locally and continuously, but the tuning range is small. Here a new mixed doping route combining HNO_3 doping and electron beam irradiation was presented, which shows greater ability to tune carrier density continuously in a larger range. By analyzing the results of the scanning near-field optical microscope and electrical transport, it was found that the mixed doping route adjusts the graphene carrier density from $2.15 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ to $-1.49 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$, which is equivalent in tuning effect to 320 V for gate tuning of the 300 nm silicon dioxide. In addition, graphene can be written into pre-designed electric patterns via electron beam irradiation, which is potentially widely applicable.

Key words: electron beam irradiation; HNO_3 doping; local doping; mixed doping; density carrier

0 引言

石墨烯作为一种理想的二维材料, 其很多物理性质可以被调控. 而这些调控大多是基于石墨烯载流子浓度的连续可调. 例如, 石墨烯在磁场中的横向电阻可以被调控到量子霍尔平台^[1]; 通过载流子浓度调节可以构建石墨烯的等离激元开关^[2]; 利用精确的载流子浓度控制可以在双层魔角石墨烯中

实现莫特绝缘态和超导态^[3]等等. 目前, 对石墨烯载流子浓度调节应用最广泛的方法是栅压调节^[4], 如图 1(a) 所示. 在石墨烯和高掺杂导电 Si 之间施加电压 V_g , 300 nm 厚的 SiO_2 充当介电层, 利用电容器充放电原理对石墨烯的载流子浓度进行调节: $\Delta n = \epsilon V_g / 4\pi k d$, 其中 ϵ 是 SiO_2 的介电常数, k 是静电力常量, d 是 SiO_2 的厚度. 这种方法可以适用大部分场景, 但同时具有一定局限性, 例如 SiO_2 绝缘

收稿日期: 2020-03-22; 修回日期: 2020-05-16

基金项目: 中国科学院战略性先导科技专项(XDC07010000)资助.

作者简介: 唐静, 女, 1994年生, 硕士. 研究方向: 石墨烯表面等离激元. E-mail: TJ2017@mail.ustc.edu.cn

通讯作者: 范晓东, 博士. E-mail: fanxd@ustc.edu.cn

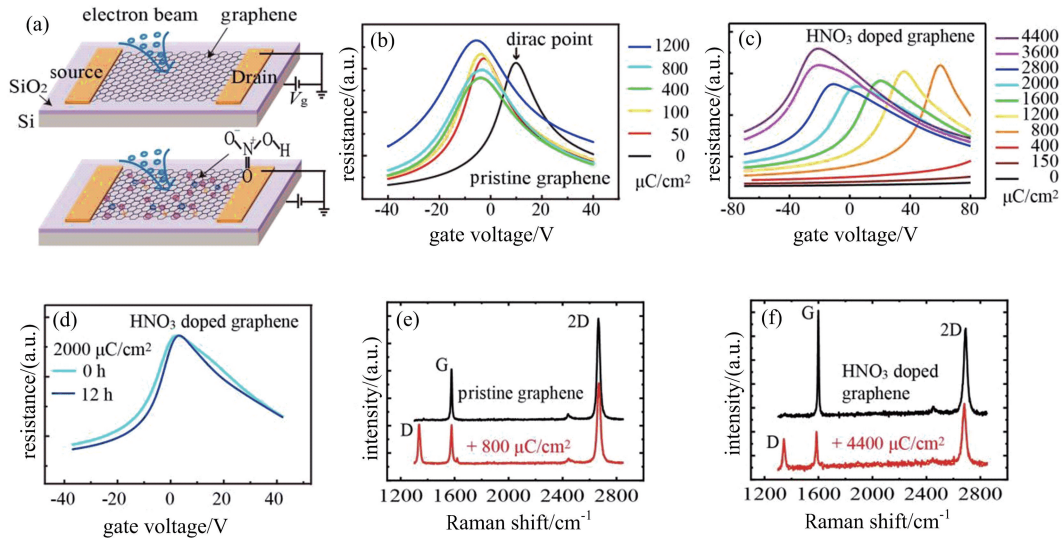
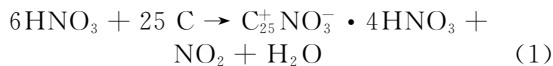


图 1 (a) 电子束分别辐照本征石墨烯和 HNO_3 掺杂石墨烯的场效应几何示意图; 不同剂量电子束辐照 (b) 本征石墨烯和 (c) HNO_3 掺杂石墨烯的电阻随栅压变化; (d) 剂量为 $2000 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ 电子束辐照的硝酸掺杂石墨烯的扫描电阻曲线, 以及放置 12 h 后再次测量的扫描电阻曲线; (e) 本征石墨烯在 $800 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ 电子束辐照前后的 Raman 光谱; (f) 硝酸掺杂石墨烯在 $4400 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ 电子束辐照前后的 Raman 光谱

Fig. 1 (a) Schematic diagram of a device for electron beams irradiation on graphene and HNO_3 -doped graphene, respectively. (b) The measured resistance as a function of gate voltage in (b) graphene and (c) HNO_3 -doped graphene with electron beams irradiation of different doses. (d) The measured resistance as a function of gate voltage of HNO_3 -doped graphene with $2000 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ electron beam irradiation, and each one after 12 h. (e) Raman spectrum of pristine graphene before and after $800 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ electron beams irradiation. (f) Raman spectrum of HNO_3 -doped graphene before and after $4400 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ electron beam irradiation

层的击穿电压限制了栅压调节的范围; 一些电路设计、测试仪器并不能承受几十甚至上百伏的高压; 较高的栅压可能会影响测试信号, 例如在轻敲模式的原子力显微镜 (AFM) 测试中, 高栅压会使得针尖不能顺利进针扫描. 目前有研究报道使用化学掺杂^[5]能大幅度地调节石墨烯载流子浓度. 当单层石墨烯暴露于硝酸 (HNO_3) 蒸汽中时, HNO_3 分子被随机吸附到石墨烯表面上并引发以下反应^[6,7]:



一些基团通过 sp^2 、 sp^3 杂化嵌入到石墨烯晶格中, 同时电子从石墨烯的碳原子向表面吸附的 HNO_3 基团上转移, 石墨烯内部出现多余空穴, 导致空穴掺杂^[6]. HNO_3 掺杂可以大范围调节石墨烯载流子浓度, 但是不能对其进行精确、连续的调制. 除此之外, 目前还有离子液体调栅的手段, 可以将石墨烯的载流子浓度调节到 $1 \times 10^{14} \text{cm}^{-2}$ ^[8,9]. 但是, 不论是栅压调节 (静电栅压或离子液体) 还是 HNO_3 掺杂, 一般都是对石墨烯载流子浓度整体的调节. 如果需要对载流子浓度局部调节就需要设计和制作复杂的衬底, 例如不同区域采用不同介电常数的材料或进行预设图案的刻蚀^[10], 但由于加工难度太大往往很难实现. 最近出现一种新的石墨烯载流子浓度调节方法: 电子束辐照^[11-15]. 电子束辐照会改变二氧化硅衬底的电荷分布从而对石墨烯进行诱导掺杂^[11], 不过其对载流子浓度的调节范围比较小, 从我们的实验结果来看, 仅从 $7.15 \times 10^{11} \text{cm}^{-2}$ 调节到 $-3.87 \times 10^{11} \text{cm}^{-2}$, 只相当于 300 nm 二氧化硅电容的栅压变化了 15 V 左右, 如图 1(b) 所示.

本文报道了一种复合掺杂的方式: HNO_3 掺杂结合电子束辐照. 我们通过电输运测试和扫描近场光学显微镜 (SNOM) 表征两种手段证实了这种复合掺杂方式可以大范围改变石墨烯的载流子浓度. 不同剂量的电子束辐照可以让 HNO_3 掺杂后的石墨烯由空穴掺杂向电子掺杂转变, 载流子浓度从 $2.15 \times 10^{13} \text{cm}^{-2}$ 调控至 $-1.49 \times 10^{12} \text{cm}^{-2}$, 效果等同于 300 nm 二氧化硅介电层 320 V 的栅压变化. 利用电子束曝光的方法, 可以方便简洁地实现局域电荷掺杂图案, 为设计和实现石墨烯光子晶体^[16]、波导调控、“电磁黑洞”^[17] 等纳米光学器件打下基础.

1 实验方法

器件制备: 使用机械剥离的方法将 Kish B 石墨解理在有 300 nm SiO_2 氧化层的 Si 衬底上, 并在光学显微镜下找到单层石墨烯. 将硅片倒置于装有浓硝酸 (98% 浓度) 的烧杯口大约 20 min, 得到 HNO_3 掺杂的单层石墨烯. 为了避免其他有机物的污染, 我们制备电极时没有使用传统的光刻胶微纳加工, 而是选择了硬质掩膜版的方式. 具体的, 在微米精度的位移平台上将有电极图形的氮化硅硬质掩膜版与石墨烯对准, 通过电子束热蒸发蒸镀 30 nm Au/5 nm Ti 的四电极结构. 将样品放置于扫描电子显微镜 (SEM) 中通过电子束曝光 (EBL) 的方式进行掺杂. 其中电子束辐照所用的孔径是 $10 \mu\text{m}$, 能量为 5 keV. 曝光剂量 $50 \sim 4400 \mu\text{C}/\text{cm}^2$.

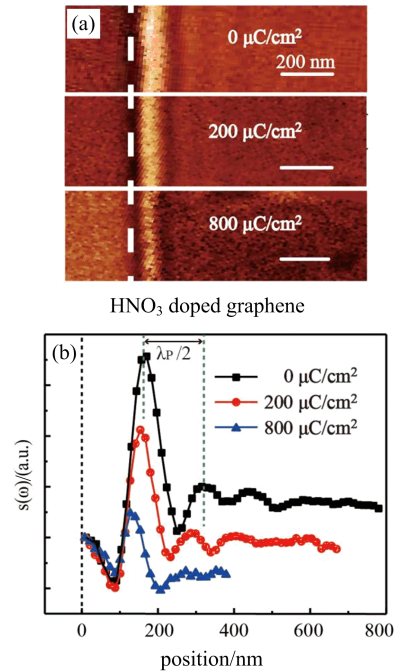
近场测试使用的是扫描式近场光学显微镜 (SNOM). SNOM 技术是以 AFM 扫描探针为基

础,将激光光束聚焦照射在针尖上,由于针尖的尺寸效应,可以在针尖处产生倏逝波(近场信号),倏逝波的波矢比入射光波矢大,恰好可以补偿光与石墨烯等离激元的波矢失配,从而激发和探测石墨烯表面传播的等离激元。

2 结果讨论

经过电子束辐照后,石墨烯的载流子浓度发生变化,体现在石墨烯场效应晶体管(FET)的测试结果中。图 1 对比了本征石墨烯和 HNO_3 掺杂石墨烯对于电子束辐照的不同响应。图 1(a)是本征石墨烯和 HNO_3 掺杂石墨烯在电子束辐照下的器件示意图。图 1(b)中不同电子束辐照剂量下扫描电阻曲线的偏移清楚地反映了电子束辐照引起的掺杂现象,本征石墨烯狄拉克点在 10 V 附近(图 1(b)中的黑色曲线),当电子束辐照剂量增加至 $50 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ 时,石墨烯狄拉克点到达 -3 V 左右,当电子束剂量进一步增加到 $1200 \mu\text{C}/\text{cm}^2$,石墨烯狄拉克点基本稳定在 -4 V 左右。这表明电子束辐照结果是电子掺杂,与之前的研究结果相符^[11-14]。图 1(c)是电子束照射 HNO_3 掺杂石墨烯的扫描电阻曲线, HNO_3 分子中带正电的 N 原子有很强的电负性会使电子转移至基团,导致石墨烯空穴掺杂^[6],其狄拉克点超出了 80 V 的测量上限。随着辐照剂量增加,狄拉克点不断向负栅压移动,当电子束剂量达到 $4400 \mu\text{C}/\text{cm}^2$, HNO_3 掺杂的石墨烯狄拉克点才稳定于 -20 V 左右。与本征石墨烯相比, HNO_3 掺杂结合电子束辐照可以更大范围地调节载流子浓度。并且,此复合方式对石墨烯的掺杂也比较稳定。我们对比了样品在刚辐照完以及放置 12 h 后的输运结果(图 1(d)),发现二者的狄拉克点位置几乎没有改变,说明经过 12 h 后,复合掺杂石墨烯的载流子浓度变化非常小。为了从原理上确定电子束对 HNO_3 掺杂石墨烯的影响,我们对电子束辐照前后的石墨烯进行了 Raman 光谱测试,结果如图 1(e),(f)所示。本征石墨烯被 $800 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ 剂量的电子束辐照后出现 D 峰,这表明电子束辐照导致了缺陷的产生^[13-15],D 峰与 G 峰的强度比为 1.014。对于本征单层石墨烯来说,G 峰的强度比 2D 峰的强度弱,而 HNO_3 掺杂后石墨烯的 G 峰超过了 2D 峰的强度(图 1(f)),这与文献中的报道类似^[5]。但是,经过 $4400 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ 的电子束辐照后,G 峰的强度又变回比 2D 峰弱的状态,我们推断这是由于电子束将石墨烯表面的 HNO_3 基团轰击脱落,类似于文献中报道的电子束将氟化石墨烯表面 F 原子脱附的过程^[18]。另一方面,经过 $4400 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ 电子束辐照后的 HNO_3 掺杂石墨烯 D 峰与 G 峰的强度比为 0.806,比本征石墨烯电子束辐照后的比值(1.014)要小,说明复合掺杂所产生的缺陷密度相对更低。考虑到 HNO_3 掺杂石墨烯应用的辐照剂量($4400 \mu\text{C}/\text{cm}^2$)比本征石墨烯($800 \mu\text{C}/\text{cm}^2$)更大,我们认为 HNO_3 基团对石墨烯起到了一定的保护作用。

从图 1(c)可以看到,部分电阻曲线并没有显示出狄拉克点(HNO_3 掺杂石墨烯以及 HNO_3 掺杂之



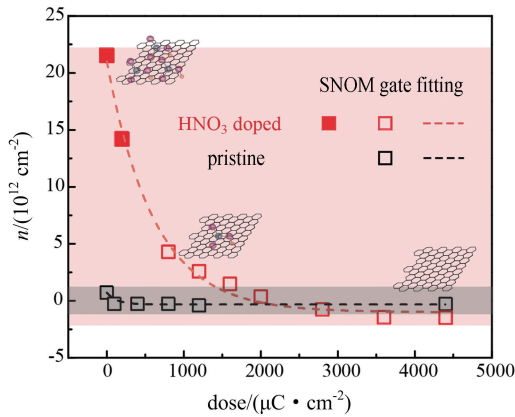
(a) 剂量为 0, 200, $800 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ 的电子束辐照的硝酸掺杂石墨烯的近场光学实空间图像;(b)从(a)提取出的归一化近场光振幅剖面图,图中 λ_p 为等离激元波长,石墨烯边缘用白色虚线标记,每个数据点除以每个图像中二氧化硅区域的平均幅度来完成归一化。激光器波长为 $10.611 \mu\text{m}$ (scalebar: 200nm)

图 2 不同剂量电子束辐照 HNO_3 掺杂石墨烯的光学近场特性

Fig. 2 Near-field optical images of HNO_3 -doped graphene with different doses of electron beams irradiation

后低剂量电子束辐照的情况),这是由于载流子浓度过高,狄拉克点的位置超出了一 80 V 到 80 V 的栅压范围(更高的栅压会击穿 300 nm SiO_2),因此无法通过栅压电阻曲线精确计算其载流子浓度。对此,我们利用 SNOM 进行表征,并由测得的等离激元波长判断其载流子浓度。如图 2(a)所示,分别为 HNO_3 掺杂石墨烯在 0, 200, $800 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ 辐照剂量下的近场图像,石墨烯在扫描针尖近场的作用下激发等离激元,等离激元波遇到石墨烯边界发生反射再与针尖相互作用形成平行于石墨烯边界的驻波^[5]。石墨烯的载流子浓度越高,则等离激元的波长 λ_p 越长,形成的驻波间距($\lambda_p/2$)也就越大。从图 2(a)中的结果中我们可以定性地推断,随着辐照剂量的增加,驻波的波长变小,则代表石墨烯的载流子浓度逐渐降低。图 2(b)是从图 2(a)提取出的归一化近场光振幅剖面图。电子束照射剂量从 0 增加至 $200 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ 时,石墨烯边界等离激元波长由 293 nm 减少到 238 nm。由于 $800 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ 的近场图像只能明显地看到一条等离激元驻波,所以难以准确地提取出波长,但从趋势上来看,其波长会比 $200 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ 的要小。载流子浓度随着辐照剂量增加而减小的现象与输运结果相吻合(如图 1(c))。

通过输运与近场测试结果,我们可以定量地得到电子辐照下石墨烯载流子浓度的变化范围。图 3 对比了本征石墨烯和 HNO_3 掺杂石墨烯的载流子浓度与电子束辐照剂量的对应关系。本征石墨烯载



黑色为本征石墨烯,红色为 HNO_3 掺杂石墨烯. 拟合曲线展示了载流子浓度随电子束辐照剂量的变化趋势;示意图给出了电子束照射 HNO_3 掺杂石墨烯导致载流子浓度变化的内在机制.

图 3 石墨烯载流子浓度随电子束辐照剂量的变化
Fig. 3 Graphene carrier density with electron beam irradiation dose

流子浓度通过图 1(b)中不同掺杂剂量的狄拉克点位置提取. HNO_3 掺杂石墨烯载流子浓度确定分两个区间,高剂量辐照区间通过图 1(c)中的狄拉克点位置确定,低剂量区间的载流子浓度通过近场测试得到的等离激元波长估算得到. 利用图 2 近场图像中提取的波长 λ_p ,根据式(2)和(3)可以计算得出载流子浓度 $n^{[19]}$. 其中激光波长 $\lambda_0 = 10.611 \mu\text{m}$,精细结构常数 $\alpha = 1/137$, E_F 为费米能, E_p 为等离激元能量, ϵ_r 为 SiO_2 的介电常数, \hbar 为约化普朗克常数,费米速度 $v_F = 10^6 \text{ m/s}$.

$$\lambda_p \approx \lambda_0 \alpha \frac{E_F}{E_p \epsilon_r + 1} \quad (2)$$

$$E_F = \hbar v_F \sqrt{\pi |n|} \quad (3)$$

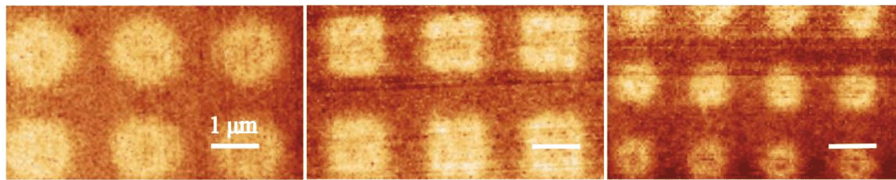


图 4 电子束局域掺杂本征石墨烯形成预设周期结构的近场图像,辐照剂量 $800 \mu\text{C}/\text{cm}^2$. (scalebar : $1 \mu\text{m}$)

Fig. 4 A near-field image of graphene locally doped with electron beam irradiation to form pre-designed shapes with an irradiation dose of $800 \mu\text{C}/\text{cm}^2$. (scalebar : $1 \mu\text{m}$)

3 结论

本文通过 HNO_3 掺杂结合电子束辐照的复合掺杂方式,实现了石墨烯载流子浓度的大幅度连续调节. 通过分析 SNOM 和电输运测试结果,可以发现,这种复合掺杂方式将石墨烯载流子浓度从 $2.15 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ 调控至 $-1.49 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$,效果相当于 300 nm 二氧化硅介电层 320 V 的栅压变化,远远超过单独的电子束掺杂方式,也优于大部分传统的掺杂手段. 另外,这种掺杂方式可以通过局域的曝光进行预设图案的掺杂,使得局域掺杂、不均匀掺杂更加简单、可控,有望应用于设计、实现全石墨烯的光子、电子学器件,有着广泛的应用

前景. 从图 3 可知,随着辐照剂量的增加,由于电子束辐照引入电子掺杂,不论是本征石墨烯还是 HNO_3 掺杂石墨烯,均由空穴掺杂到电子掺杂过渡. 本征石墨烯载流子浓度(黑色方框)随着电子束照射的变化范围小于 $1.2 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$. 而对于 HNO_3 掺杂石墨烯,电子束辐照可以使其载流子浓度(红色方框)从 $2.15 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ 变化至 $-1.49 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$,相当于 300 nm 二氧化硅介电层 320 V 的栅压变化,大约是本征石墨烯电子束调控范围的 20 倍. 拟合曲线形式为 $A + B \exp(\text{Dose}/C)$,展示了载流子浓度随电子束辐照剂量的变化趋势. 与单纯的电子束掺杂相比的掺杂方式相比, HNO_3 掺杂结合电子束辐照复合掺杂方式可以更大范围地连续调控石墨烯载流子浓度. 前文中我们判断,电子束可以将吸附在石墨烯表面的 HNO_3 基团轰击脱落,正是这一过程使电子又重新返回石墨烯中,费米面上升,载流子浓度逐渐变化到 HNO_3 掺杂之前的水平,导致了大范围的载流子浓度调制(如图 3 中的示意图所示). 因此,从原理上考虑,此复合掺杂方式应对双层和少层石墨烯也具有类似的调节效果.

利用电子束辐照的方法可以在石墨烯中形成局域掺杂. 首先,我们使用预设的图形对石墨烯曝光,形成周期性的掺杂结构,曝光剂量为 $800 \mu\text{C}/\text{cm}^2$. 然后,我们利用 SNOM 对曝光的区域进行表征,结果如图 4 所示,亮区是电子束曝光区域. 这样的掺杂方式使得我们可以在石墨烯中构造任意的电子图形,对基于石墨烯的电子电路及纳米光学器件设计提供了一种可靠的方案. 例如,通过周期图案的掺杂可以在石墨烯中实现二维光子晶体^[16],通过掺杂图案的设计可以在石墨烯中模拟“电磁黑洞”效应^[17],实现凹透镜、凸透镜等“光学棱镜”的功能^[20].

前景.

参考文献(References)

- [1] NOVOSELOV K S, GEIM A K, MOROZOV S V, et al. Two-dimensional gas of massless Dirac fermions in graphene[J]. Nature, 2005, 438(7065): 197-200.
- [2] WANG D, FAN X, LI X, et al. Quantum control of graphene plasmon excitation and propagation at heaviside potential steps[J]. Nano Letters, 2018, 18(2): 1373-1378.
- [3] CAO Y, FATEMI V, FANG S, et al. Unconventional superconductivity in magic-angle graphene superlattices [J]. Nature, 2018, 556(7699): 43-50.
- [4] NOVOSELOV K S, GEIM A K, MOROZOV S V, et al. Electric field effect in atomically thin carbon films

- [J]. *Science*, 2004, 306(5696): 666-669.
- [5] ZHENG Z, WANG W, MA T, et al. Chemically-doped graphene with improved surface plasmon characteristics: An optical near-field study [J]. *Nanoscale*, 2016, 8(37): 16621-16630.
- [6] GENG H Z, KIM K K, SO K P, et al. Effect of acid treatment on carbon nanotube-based flexible transparent conducting films [J]. *Journal of the American Chemical Society*, 2007, 129 (25): 7758-7759.
- [7] DAS S, SUDHAGAR P, ITO E, et al. Effect of HNO₃ functionalization on large scale graphene for enhanced tri-iodide reduction in dye-sensitized solar cells[J]. *Journal of Materials Chemistry*, 2012, 22 (38): 20490-20497.
- [8] DMITRI K, PHILIP KIM. Controlling electron-phonon interactions in graphene at ultrahigh carrier densities [J]. *Physical Review Letters* 2010, 105 (25): 256805.
- [9] YE J, CRACIUN M F, KOSHINO M, et al. Accessing the transport properties of graphene and its multilayers at high carrier density[J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 2011, 108(32): 13002-13006.
- [10] VAKIL A, ENGHETA N. Transformation optics using graphene [J]. *Science*, 2011, 332 (6035): 1291-1294.
- [11] ZHOU Y, JADWISZCZAK J, KEANE D, et al. Programmable graphene doping via electron beam irradiation[J]. *Nanoscale*, 2017, 9(25): 8657-8664.
- [12] YU X, SHEN Y, LIU T, et al. Photocurrent generation in lateral graphene p-n junction created by electron-beam irradiation[J]. *Scientific Reports*, 2015 (5): 12014.
- [13] LIU G, DESALEGNE T, BALANDIN A A. Tuning of graphene properties via controlled exposure to electron beams[J]. *IEEE Transactions on Nanotechnology*, 2010, 10(4): 865-870.
- [14] CHILDRES I, JAUREGUI L A, FOXE M, et al. Effect of electron-beam irradiation on graphene field effect devices[J]. *Applied Physics Letters*, 2010, 97 (17): 173109.
- [15] KOMSA H P, KOTAKOSKI J, KURASCH S, et al. Two-dimensional transition metal dichalcogenides under electron irradiation: Defect production and doping [J]. *Physical Review Letters*, 2012, 109 (3): 035503.
- [16] XIONG L, FORSYTHE C, JUNG M, et al. Photonic crystal for graphene plasmons [J]. *Nature Communications*, 2019, 10(1): 1-6.
- [17] YUN J, WEI B L, HONG J X, et al. A planar electromagnetic "black hole" based on graphene[J]. *Physics Letters A*, 2012, 376(17): 1468-1471.
- [18] WITHERS F, BOINTON T H, DUBOIS M, et al. Nanopatterning of fluorinated graphene by electron beam irradiation [J]. *Nano Letters*, 2011, 11(9): 3912-3916.
- [19] CHEN J, BADIOLI M, ALONSO-GONZÁLEZ P, et al. Optical nano-imaging of gate-tunable graphene plasmons[J]. *Nature*, 2012, 487(7405): 77-81.
- [20] HONG J X, WEI B L, YUN J, et al. Beam-scanning planar lens based on graphene [J]. *Applied Physics Letters*, 2012, 100(5): 051903.