

石墨烯等二维原子晶体薄片样品的光学衬度 计算及其层数表征*

韩文鹏 史衍猛 李晓莉 罗师强 鲁妍 谭平恒†

(中国科学院半导体研究所, 半导体超晶格国家重点实验室, 北京 100083)

(2012 年 12 月 14 日收到; 2013 年 1 月 8 日收到修改稿)

本文以鉴别机械剥离法制备的高质量石墨烯样品的层数为例, 阐明了如何利用传输矩阵来计算二维原子晶体薄片样品的光学衬度, 并进一步精确地鉴别其层数. 计算结果表明测试时所选用的显微物镜数值孔径对精确确定薄片样品的层数非常重要, 并为实验所证实. 同时提出了使用两个激光波长可以快速地表征样品尺寸接近物镜衍射极限的薄片样品层数的方法. 本文所采用的传输矩阵形式非常适合于计算二维原子晶体薄片样品的光学衬度, 并可以方便地推广到更复杂的多层衬底结构, 以便快速和准确地鉴别各种衬底上二维原子晶体薄片样品的厚度.

关键词: 二维原子晶体材料, 层数, 传输矩阵, 光学衬度

PACS: 07.05.Tp, 42.25.Bs, 68.65.Pq, 78.30.-j

DOI: 10.7498/aps.62.110702

1 引言

自从 2004 年曼彻斯特大学的研究小组利用机械剥离法制备并观测到单原子层石墨烯 (Graphene) 后^[1], 氮化硼 (BN)、二硫化钼 (MoS_2)、硫化镓 (GaS)、硒化镓 (GaSe)、硒化铋 (Bi_2Se_3) 等单层二维原子晶体也被制备出来. 这些单层二维原子晶体材料与它们各自的体材料相比有很多独特的性质, 正是由于这些独特的在光学、电学、力学和磁学方面的性质, 以及有可能成为下一代纳米电子器件原材料的潜力^[2-5], 使它们无一不受到全世界科研人员的巨大关注. 但是有研究意义和应用价值的性质和现象不仅仅局限于单层材料, 双层或少数层二维原子晶体材料也具有许多特殊性质^[6], 而且随着层数的增加, 直到厚度接近于体材料, 它们之间的性质都会发生明显的改变. 所以建立一种能够快速、准确地判断二维原子晶体层数的方法, 对二维原子晶体材料的基础研究和应用推广都具有非常重要的意义.

通常, 判断二维原子晶体材料层数的最直接

方法是利用原子力显微镜进行测量, 但是这种方法效率很低, 而且由于测量时针尖要与样品直接接触, 有时会对样品造成损坏. 除此以外, 鉴别二维原子晶体材料层数的方法还有拉曼光谱^[6-10]和光学衬度^[11,12]. 人们利用所研究样品本身拉曼特征模式的线型、峰位以及强度随着层数的变化关系可以确定样品的层数^[6-10]. 此方法简单方便且应用广泛, 但是只能定性地获取样品的层数信息, 并受到样品制备方法和二维原子晶体各原子层的堆积方式的影响, 通常只适用于较少层数的精确判断. 通过比较实验测量和理论计算的光学衬度也可确定二维原子晶体材料薄片样品的层数, 并且此方法基本适用于层数较多的各种二维原子晶体材料薄片样品. 描述光在介质中传播的多重波法^[11-14]和传输矩阵法^[15,16]都可以用来计算二维原子晶体材料的光学衬度, 其中多重波法需要计算光波在每一层介质间的多重反射^[14], 计算过程繁琐, 不利于多层介质中光传播的计算; 传输矩阵法仅使用一特征矩阵就可精确描述光传播过某一层介质时电场和磁场的分布, 并且此特征矩阵只与入射光角度以及该

* 国家重点基础研究发展计划 (批准号: 2009CB929301) 和国家自然科学基金 (批准号: 11225421, 10934007) 资助的课题.

† 通讯作者. E-mail: phtan@semi.ac.cn

介质层的折射率和厚度有关, 因此可以利用传输矩阵法很方便地计算光在多层介质结构中的传播. 在最近利用光学衬度法确定二维原子晶体材料层数的一些研究中^[11,12], 只计算光沿垂直方向入射的情况, 忽略 s 波与 p 波在传播时的差异以及对入射角度的依赖, 造成理论计算值与实验测量值出现差异, 特别在使用大数值孔径的物镜进行测量的时候, 差异比较大, 不能准确地判断样品的层数.

本文利用传输矩阵法计算任意角度入射光在多层介质中的传播, 并根据此计算不同数值孔径下样品的光学衬度, 然后与实验测量得到的光学衬度相比较来鉴别机械剥离法制备的石墨烯样品的层数, 以此为例来阐述光学衬度法作为一种简单、高效、精确的方法在鉴别石墨烯样品层数上的应用, 并可将此方法推广到其他二维原子晶体材料中去.

2 实验方法

本实验所用不同层数的石墨烯样品是利用机械剥离法在二氧化硅厚度为 90 nm 的二氧化硅/硅衬底制备的. 为方便起见, 下面我们把 N 层石墨烯简称为 NLG. 拉曼光谱和光学衬度光谱均是用带有液氮冷却的电荷耦合器探测器的 HR800 型共焦显微拉曼光谱仪测量的, 其中拉曼光谱测量所用的激光波长为 He-Ne 激光器的 633 nm 激光, 到达样品表面的功率小于 0.5 mW, 以避免产生样品加热效应^[17]. 谱仪所用的显微物镜为 NA = 0.9 的 100 倍物镜, 激光在样品上的聚焦光斑约为 1 μm . 测量光学衬度所使用的白光光源为卤钨灯, 显微物镜分别为 NA = 0.9 的 100 倍物镜和 NA = 0.45 的 50 倍物镜.

为了方便进行后续衬度的实验测试和理论计算, 我们先利用拉曼光谱表征了所制备的少层石墨烯样品的层数^[7,8]. 实验所制备的不同层数石墨烯样品的光学图像如图 1(a) 所示, 相应的拉曼光谱图如图 1(b) 所示. 位于 1582 cm^{-1} 附近的拉曼模为来源于石墨烯布里渊区中心声子的 G 模, 而位于 2700 cm^{-1} 附近的拉曼模为来源于石墨烯布里渊区边界 K 点附近声子的 2D 模^[18]. 这两个拉曼模式的强度和线型是用来进行石墨烯层数鉴别的主要依据^[7,8]. G 模的峰位基本不随石墨烯层数的改变而改变, 但其强度会随层数的增加逐渐增加, 随着层数的继续增加, 最终其强度会下降并逐渐接近体材料^[8]. 2D 模的线型严重依赖于石墨烯的层数, 这

主要是因为来自布里渊区边界 D 模声子的倍频模 (2D 模) 因双共振拉曼共振过程而被拉曼激活, 其线型也就与不同层数石墨烯显著不同的电子能带结构密切相关^[8]. 通过与 Zhao 等^[8] 的结果比较, 利用 2D 模的线型可以确定相对比较亮的两处样品为 2LG 和 4LG. 但是利用此方法无法判断较厚石墨烯样品的层数 (如图 1 中的 6LG 和 9LG).

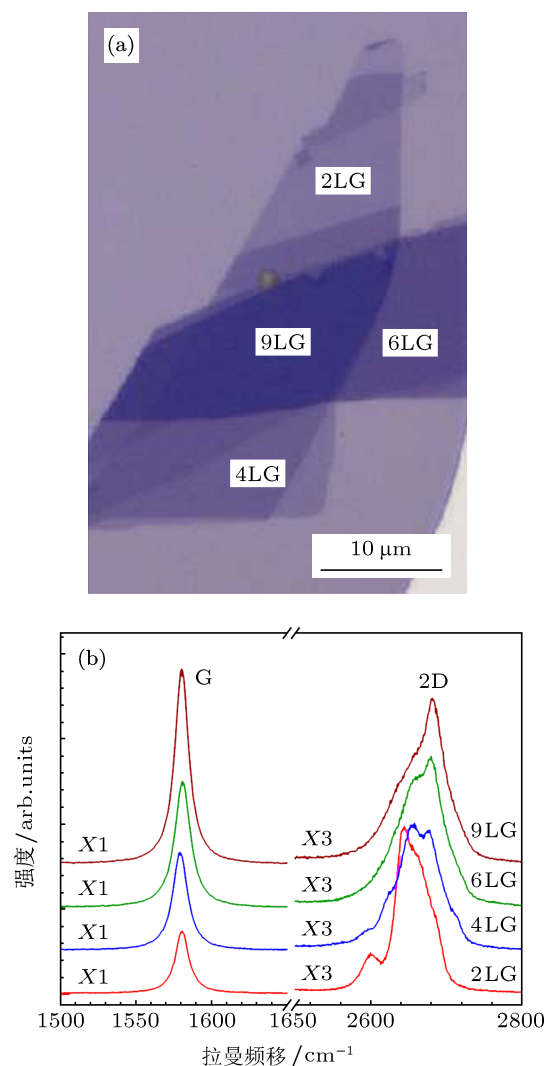


图 1 (a) 二氧化硅厚度为 90 nm 的二氧化硅/硅衬底上石墨烯样品的光学显微图像; (b) 对应 (a) 中不同层数样品的拉曼光谱, 其中 2D 模的强度放大为原测量值的 3 倍

3 复杂衬底上石墨烯薄片的光学衬度计算

由于单原子层石墨烯的厚度仅为 0.335 nm, 以及高达 97.7% 光通过率^[19], 导致它在大多数衬底上都很难被观察到, 但是当把单层石墨烯放到特定二氧化硅厚度 (通常为 90 nm 和 300 nm) 的二氧化硅/硅衬底上 (以下简称衬底) 时, 由于光在各介质

层内的干涉作用导致石墨烯样品的光学衬度增加, 石墨烯样品便可容易地被观察到了.

下面具体介绍如何利用传输矩阵法来计算全数值孔径时有样品处入射光的反射率 $R(\text{sub}+\text{film})$, 并由此计算不同数值孔径下样品的光学衬度. 我们把光学衬度 (C) 定义为

$$C = \frac{R(\text{sub}) - R(\text{sub} + \text{film})}{R(\text{sub})} \times 100\%, \quad (1)$$

其中, $R(\text{sub})$, $R(\text{sub}+\text{film})$ 分别表示裸露衬底和有样品处入射 (白) 光的反射率, 如图 2(a) 所示.

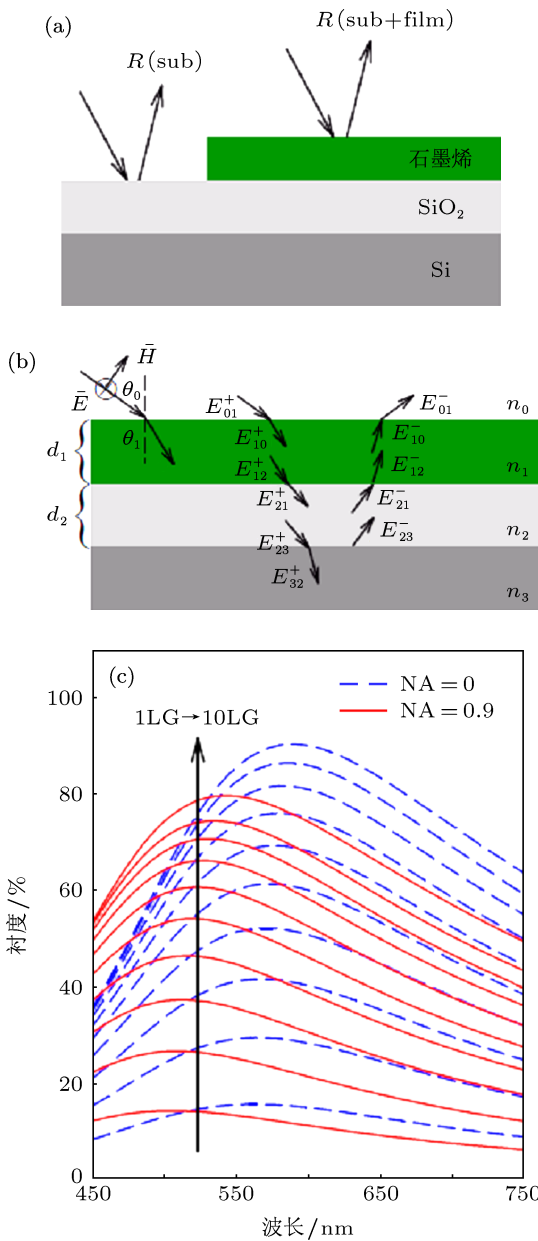


图 2 (a) 样品光学衬度的计算示意图; (b) 光在 4 层介质结构中传播的示意图; (c) 显微物镜的数值孔径分别为 0(短划线)、0.9(实线) 时 1 至 10 层石墨烯 (1LG—10LG) 的光学衬度随入射光波长变化的理论计算值

我们考虑如图 2(b) 所示的空气/石墨烯/二氧化硅/硅四层介质结构, 其中 $d_1 = N \times 0.335 \text{ nm}$ 为石墨烯样品的厚度, N 为石墨烯样品的层数, d_2 为二氧化硅薄膜的厚度; $n_0, \tilde{n}_1, n_2, \tilde{n}_3$ 分别为空气、石墨烯^[20]、二氧化硅和硅^[21] 的折射率; 其中石墨烯的折射率为 $\tilde{n}_1(\lambda) = n(\lambda) - ik(\lambda)$, 我们发现在可见光范围内, 石墨烯折射率的实部 n 和虚部 k 变化都比较平坦, 其实验测量值^[20] 可由以下两式很好的拟合出来:

$$n(\lambda) = ae^{b\lambda} + ce^{d\lambda}, \quad (2)$$

$$k(\lambda) = k_0 + k_1 \cos(\omega\lambda) + k_2 \sin(\omega\lambda) + k_3 \cos(2\omega\lambda) + k_4 \sin(2\omega\lambda) + k_5 \cos(3\omega\lambda) + k_6 \sin(3\omega\lambda), \quad (3)$$

其中 $a = 45.96$, $b = -0.01426$, $c = 2.222$, $d = 0.0003668$, k_0 到 k_6 分别为 3.621×10^6 , -5.292×10^6 , 1.226×10^6 , 1.951×10^6 , -9.558×10^5 , -2.809×10^5 , 2.286×10^5 , $\omega = -0.0003466$; 由于多层石墨烯样品层与层之间仅依赖分子间作用力结合在一起, 并且我们所研究多层石墨烯样品的层数一般都比较少 (小于 50 层), 厚度远远小于体石墨, 因此与众多计算结果一样^[11,12], 我们没有考虑石墨烯的折射率可能随着样品层数变化的微小差异. 另外, 由于衬底上单层石墨烯的原子力显微镜测试厚度一般为 1.0 nm 左右, 表面石墨烯与衬底之间可能存在的空气层厚度小于 1.0 nm . 计算结果表明此厚度对衬度计算影响很小, 因此在计算中我们没有考虑石墨烯与衬底之间可能存在的超薄空气层. 当入射光以入射角为 θ_0 的方向入射时, 光在每层介质内的折射角可由斯涅耳定律求出: $\theta_i = \arcsin(\sin \theta_0 / n_i)$. $E_{ij}^{\pm}$ 表示在第 i 层介质内靠近第 i 层与第 j 层交界处的电场强度, $+$ 、 $-$ 号分别表示光的入射和反射方向. 由于光不能够穿透硅衬底介质层, 所以在硅衬底介质层内只有向下传播的入射光, 而没有向上传播的反射光. 由电磁场的边界条件和电场在介质层内的传播关系可得空气与石墨烯界面 ($E_{01}^{\pm}$ 和 $E_{10}^{\pm}$)、石墨烯与二氧化硅界面 ($E_{21}^{\pm}$) 以及二氧化硅与硅衬底界面 ($E_{32}^{\pm}$) 处电场强度之间的关系:

$$\begin{pmatrix} E_{01}^+ \\ E_{01}^- \end{pmatrix} = \frac{1}{t_{01}} \begin{pmatrix} 1 & r_{01} \\ r_{01} & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_{10}^+ \\ E_{10}^- \end{pmatrix}, \quad (4)$$

$$\begin{pmatrix} E_{10}^+ \\ E_{10}^- \end{pmatrix} = \frac{1}{t_{12}} \begin{pmatrix} e^{i\delta_1} & r_{12}e^{i\delta_1} \\ r_{12}e^{-i\delta_1} & e^{-i\delta_1} \end{pmatrix}$$

$$\begin{aligned} & \times \begin{pmatrix} E_{21}^+ \\ E_{21}^- \end{pmatrix}, \\ \begin{pmatrix} E_{21}^+ \\ E_{21}^- \end{pmatrix} &= \frac{1}{t_{23}} \begin{pmatrix} e^{i\delta_2} & r_{23}e^{i\delta_2} \\ r_{23}e^{-i\delta_2} & e^{-i\delta_2} \end{pmatrix} \\ & \times \begin{pmatrix} E_{32}^+ \\ 0 \end{pmatrix}. \end{aligned} \quad (5)$$

$$\quad (6)$$

由 (4) 至 (6) 式可得

$$\begin{aligned} \begin{pmatrix} E_{01}^+ \\ E_{01}^- \end{pmatrix} &= \frac{1}{t_{01}t_{12}t_{23}} \begin{pmatrix} 1 & r_{01} \\ r_{01} & 1 \end{pmatrix} \\ & \times \begin{pmatrix} e^{i\delta_1} & r_{12}e^{i\delta_1} \\ r_{12}e^{-i\delta_1} & e^{-i\delta_1} \end{pmatrix} \\ & \times \begin{pmatrix} e^{i\delta_2} & r_{23}e^{i\delta_2} \\ r_{23}e^{-i\delta_2} & e^{-i\delta_2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_{32}^+ \\ 0 \end{pmatrix} \\ &= \frac{1}{t_{01}t_{12}t_{23}} \begin{pmatrix} 1 & r_{01} \\ r_{01} & 1 \end{pmatrix} M_{12}M_{23} \\ & \times \begin{pmatrix} E_{32}^+ \\ 0 \end{pmatrix}, \end{aligned} \quad (7)$$

上式即为考虑入射光角度时传输矩阵法所描述的光在 4 层介质结构中的传播关系, 其中

$$M_{ij} = \begin{pmatrix} e^{i\delta_i} & r_{ij}e^{i\delta_i} \\ r_{ij}e^{-i\delta_i} & e^{-i\delta_i} \end{pmatrix}$$

为特征矩阵, $\delta_i = 2\pi n_i d_i \cos \theta_i / \lambda$ 为第 i 层介质的位相因子, 即光波穿过该介质层后的位相变化, λ 为入射光的波长, d_i 为第 i 层介质膜的厚度. 可以把 (7) 式推广到任意多层的介质结构. 对于 s 波和 p 波, (7) 式的写法完全相同, 只是第 i 层与第 j 层介质交界面上的透射系数和反射系数不同,

$$\begin{aligned} t_{ij}^s &= \frac{2n_i \cos \theta_i}{n_i \cos \theta_i + n_j \cos \theta_j}, & t_{ij}^p &= \frac{2n_i \cos \theta_i}{n_j \cos \theta_i + n_i \cos \theta_j} \\ r_{ij}^s &= \frac{n_i \cos \theta_i - n_j \cos \theta_j}{n_i \cos \theta_i + n_j \cos \theta_j}, & r_{ij}^p &= \frac{n_j \cos \theta_i - n_i \cos \theta_j}{n_j \cos \theta_i + n_i \cos \theta_j}. \end{aligned}$$

本文中特征矩阵的形式和传统写法有所不同^[15], 主要原因在于 (7) 式中左边一项为沿入射方向传播的电场和沿反射方向传播的电场, 而不是像传统写法那样写成总的电场和磁场, 这种形式的优点是可直接据此推导出反射率的计算公式, 进而求得样品的光学衬度.

直接利用 (7) 式可得到:

$$\begin{pmatrix} E_{01}^+ \\ E_{01}^- \end{pmatrix} = \frac{1}{t_{01}t_{12}t_{23}} \begin{pmatrix} \mu_{11} & \mu_{12} \\ \mu_{21} & \mu_{22} \end{pmatrix} \times \begin{pmatrix} E_{32}^+ \\ 0 \end{pmatrix}, \quad (8)$$

其中矩阵元 μ_{ij} ($i, j = 1, 2$) 由 (7) 式中矩阵 $M_{12}M_{23}$ 的乘积决定. 由 (8) 式马上可求得入射角度为 θ_0 时该四层膜结构的反射比 $r(\theta) = \frac{E_{01}^-}{E_{01}^+} = \frac{\mu_{21}}{\mu_{11}}$, 进而可求得入射角为 θ_0 时该四层膜结构的反射率 $R(\theta) = r \cdot r^*$, 将 s 波和 p 波对应的透射系数和反射系数分别代入, 可求得 $R^s(\theta)$ 与 $R^p(\theta)$. 将 $R^s(\theta) + R^p(\theta)$ 对入射角度 θ 求积分即可得到总的反射率

$$\begin{aligned} & R(\text{sub} + \text{film}) \\ &= \int_0^{\theta_{\max}} (R^s(\theta) + R^p(\theta)) \pi \sin \theta \cos \theta d\theta, \end{aligned} \quad (9)$$

其中 $\theta_{\max} = \arcsin(\text{NA})$, NA 为物镜的数值孔径; 同样, 裸露衬底反射率 $R(\text{sub})$ 的求解对应于一个三层介质结构: 空气/二氧化硅/硅. 类似于 $R(\text{sub} + \text{film})$ 的求解方法, 可求得裸露衬底处入射光总的反射率 $R(\text{sub})$. 将 $R(\text{sub} + \text{film})$ 和 $R(\text{sub})$ 代入 (1) 式, 即可求得多层石墨烯的光学衬度.

图 2(c) 给出了由 (9) 式理论计算的数值孔径分别为 0 和 0.9 时在二氧化硅/硅衬底上 1 LG 到 10 LG 样品的光学衬度随入射光波长的变化情况, 这里二氧化硅层的厚度为 90 nm. 由图可见, 当数值孔径从 0 改变为 0.9 时, 不但光学衬度的大小发生了改变, 而且最大光学衬度所对应的光波长也发生了明显改变. 因此, 如果只简单计算光沿垂直方向入射 (即 NA=0) 时的光学衬度, 并把它作为依据确定样品的层数, 将会产生比较大的误差. 同时我们发现 10 层内的石墨烯样品的光学衬度随着样品层数的增加而单调增大, 说明光学衬度法是一种判断少数层石墨烯样品层数的理想方法.

4 结果分析与讨论

下面我们阐明如何利用考虑数值孔径时的光学衬度来确定图 1(a) 中石墨烯样品的层数. 图 3(a) 给出了显微物镜数值孔径为 0.9 时各层石墨烯光学衬度的实验测量值和理论计算值, 通过实验与理论结果的对比, 可以确定多层石墨烯样品包含了 2LG,

4LG, 6LG 和 9LG, 其中 2LG 和 4LG 样品的判断和利用 2D 模型型所确定的层数完全符合. 这表明了利用光学衬度确定石墨烯样品层数的可行性和准确性.

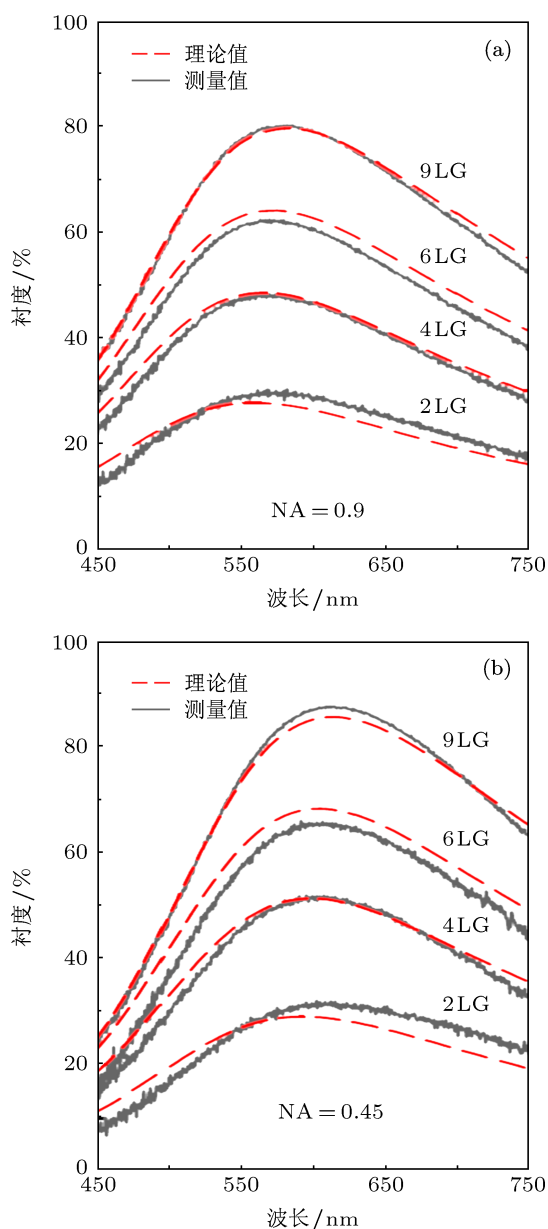


图3 不同层数石墨烯样品在 (a) $NA=0.9$ 和 (b) $NA=0.45$ 时光学衬度的理论计算值 (红色短划线) 与实验测量值 (灰色实线) 的对比图

为了进一步验证显微镜数值孔径在利用光学衬度鉴别石墨烯层数中具有不可忽略的重要性, 我们选用了不同数值孔径的显微物镜来表征石墨烯样品的层数. 图 3(b) 给出了使用数值孔径为 0.45 的显微物镜时光学衬度的实验测量值和理论计算值, 这时所确定的样品层数与数值孔径为 0.9 时完全相同. 通过这两种情况的相互印证, 说明我们的

结果是准确的和可信的. 对于物镜数值孔径比较大 ($NA=0.9$) 的情况, 由于入射 (白) 光并不能像激光那样的完美聚焦, 所以在理论计算过程中要使用数值小一些的数值孔径, 即有效数值孔径 NA_{eff} . 我们所使用物镜的 NA_{eff} 为 0.81. 对于较小数值孔径的物镜, 则不必在计算过程中考虑有效数值孔径.

以上我们介绍了利用可见光范围内全波长的光学衬度确定石墨烯样品层数的方法. 由于这种方法使用的光源一般是非相干光源, 如卤钨灯等, 因此使用显微物镜聚焦时得不到较小的光斑, 这就影响其在小尺寸样品 (如几微米或亚微米) 表征中的应用. 事实上, 也可以使用单色激光波长作为入射光来测试材料样品的衬度, 这时可以表征尺寸与其衍射极限相当的样品. 从图 1 可看出, 样品的光学衬度一般会随样品层数的增加而增加, 到达一定厚度后, 又随样品厚度的增加而减小. 因此, 使用单色激光测试得到样品的某一数值的光学衬度后, 至少有两个层数的样品与之对应. 这时精确确定样品的厚度变得很困难. 为了解决这一问题, 我们可以使用另一波长的激光作为入射光来标定样品的层数.

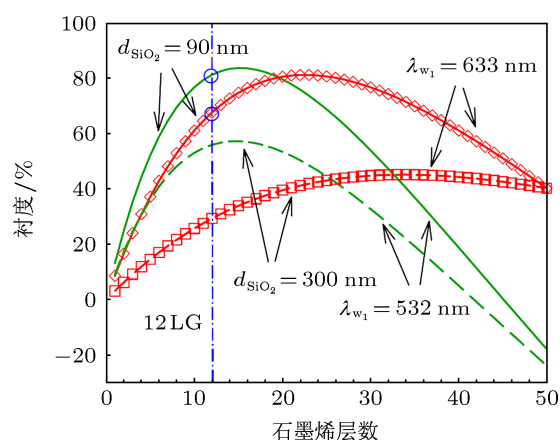


图4 $NA=0.9$ 时不同二氧化硅厚度 ($d_{\text{SiO}_2}=90\text{ nm}$, 300 nm) 的硅衬底上多层石墨烯样品在不同波长 ($\lambda_{w1}=532\text{ nm}$, 633 nm) 入射时光学衬度随着样品层数变化的理论计算值

图 4 给出了两种激光波长 (532 nm 和 633 nm) 入射到二氧化硅厚度分别为 90 nm 和 300 nm 的两种常用的二氧化硅/硅衬底上的 1 至 50 层石墨烯样品的光学衬度. 这里物镜数值孔径为 0.9. 这时, 对于某一层数的石墨烯, 例如图 4 中在二氧化硅厚度为 90 nm 的硅衬底上的 12LG, 使用 532 nm 和 633 nm 激光就可获得两个不同的衬度值, 如图中圆圈所示. 根据这两个衬度数值, 就能唯一地确定所测石墨烯的层数为 12LG, 而不是其他层数的石墨烯.

上面我们以机械剥离法制备的高质量多层石墨烯样品为例,详细阐明了如何利用光学衬度来鉴别其原子层数的原理与过程,并且阐述了测试所用的显微物镜数值孔径对衬度计算的影响.多层石墨烯仅仅是二维原子晶体中的一种材料.因此,我们上面提出的方法可以推广到其他二维原子晶体,例如氮化硼(BN)、二硫化钼(MoS_2)^[4,22]、硫化钨(WS_2)^[23]、硒化钨(WSe_2)^[23]、硫化镓(GaS)^[24]、硒化镓(GaSe)和硒化铋(Bi_2Se_3)等材料.

5 结论

本文详细介绍了如何利用传输矩阵法计算入

射光具有一定角度时薄层材料反射率的方法,并据此计算了不同数值孔径下样品的光学衬度,从理论上阐明了光学衬度对数值孔径的依赖关系.以机械剥离法制备的多层石墨烯样品为例,详细阐明了如何利用光学衬度来鉴别二维原子晶体薄层材料原子层数的原理与过程.分别利用两个不同数值孔径的显微物镜测量了样品的光学衬度并确定了样品的层数,证明了测量时所用显微物镜的数值孔径对精确确定石墨烯样品层数的重要性.最后,本文还提出了使用两个激光波长来快速地表征样品尺寸接近物镜衍射极限的薄片材料层数的方法.

-
- [1] Novoselov K S, Jiang D, Schedin F, Booth T J, Khotkevich V V, Morozov S V, Geim A K 2005 *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **102** 10451
 - [2] Mak K F, Lee C, Hone J, Shan J, Heinz T F 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 136805
 - [3] Splendiani A, Sun L, Zhang Y, Li T, Kim J, Chim C Y, Galli G, Wang F 2010 *Nano Lett.* **10** 1271
 - [4] Cao T, Wang G, Han W P, Ye H Q, Zhu C R, Shi J R, Niu Q, Tan P H, Wang E G, Liu B L, Feng J 2012 *Nature Communications* **3** 887
 - [5] Zhang Y, He K, Chang C Z, Song C L, Wang L L, Chen X, Jia J F, Fang Z, Dai X, Shan W Y, Shen S Q, Niu Q, Qi X L, Zhang S C, Ma X C, Xue Q K 2010 *Nat. Phys.* **6** 584
 - [6] Tan P H, Han W P, Zhao W J, Wu Z H, Chang K, Wang H, Wang Y F, Bonini N, Marzari N, Savini G, Lombardo A, Ferrari A C 2012 *Nature Materials* **11** 294
 - [7] Ferrari A C, Meyer J C, Scardaci V, Casiraghi C, Lazzeri M, Mauri F, Piscanec S, Jiang D, Novoselov K S, Roth S, Geim A K 2006 *Phys. Rev. Lett.* **97** 187401
 - [8] Zhao W J, Tan P H, Zhang J, Liu J 2010 *Phys. Rev. B* **82** 245423
 - [9] Zhao W J, Tan P H, Liu J, Ferrari A C 2011 *J. Am. Chem. Soc.* **113** 5941
 - [10] Kang C Y, Tang J, Li L M, Yan W S, Xu P S, Wei S Q 2012 *Acta Phys. Sin.* **61** 037302 (in Chinese) [康朝阳, 唐军, 李利民, 闫文盛, 徐彭寿, 韦世强 2012 物理学报 **61** 037302]
 - [11] Blake P, Hill E W, Castro Neto A H, Novoselov K S, Jiang D, Yang R, Booth T J, Geim A K 2007 *Appl. Phys. Lett.* **91** 063124
 - [12] Ni Z H, Wang H M, Kasim J, Fan H M, Yu T, Wu Y H, Feng Y P, Shen Z X 2007 *Nano Lett.* **7** 2758
 - [13] Wang Y Y, Ni Z H, Shen Z X, Wang H M, Wu Y H 2008 *Appl. Phys. Lett.* **92** 043121
 - [14] Yoon D, Moon H, Son Y W, Choi J S, Park B H, Cha Y H, Kim Y D, Cheong H 2009 *Phys. Rev. B* **80** 125422
 - [15] Born M, Wolf E 1999 *Principles of Optics* (7th Edn) (London: Cambridge University Press) p58
 - [16] Liu X J, Zhang B J, Wang J, Zhang S Q, Ba N, Li H, Wu X Y, Guo Y Q 2012 *Acta Phys. Sin.* **61** 237801 (in Chinese) [刘晓静, 张伯军, 王婧, 张斯淇, 巴诺, 李宏, 吴向尧, 郭义庆 2012 物理学报 **61** 237801]
 - [17] Tan P H, Deng Y M, Zhao Q, Cheng W C 1999 *Appl. Phys. Lett.* **74** 1818
 - [18] Tan P H, An L, Liu L Q, Guo Z X, Czerw R, Carroll D L, Ajayan P M, Zhang N, Guo H L 2002 *Phys. Rev. B* **66** 245410
 - [19] Nair R R, Blake P, Grigorenko A N, Novoselov K S, Booth T J, Stauber T, Peres N M R, Geim A K 2008 *Science* **320** 1308
 - [20] Kravets V G, Grigorenko A N, Nair R R, Blake P, Anissimova S, Novoselov K S, Geim A K 2010 *Phys. Rev. B* **81** 155413
 - [21] Palik E D Ed. 1985 *Handbook of Optical Constants of Solids* (New York: Academic Press)
 - [22] Zhang X, Han W P, Wu J B, Milana S, Lu Y, Li Q Q, Ferrari A C, Tan P H *arXiv* **1212** 6796
 - [23] Zhao W, Ghorannevis Z, Chu L, Toh M, Kloc C, Tan P H, Eda G 2012 *ACS Nano*, DOI: 10.1021/nn305275h, accepted for publication.
 - [24] Hu P A, Wen Z Z, Wang L F, Tan P H, Xiao K 2012 *ACS Nano* **6** 5988

The numerical-aperture-dependent optical contrast and thickness determination of ultrathin flakes of two-dimensional atomic crystals: A case of graphene multilayers*

Han Wen-Peng Shi Yan-Meng Li Xiao-Li Luo Shi-Qiang
Lu Yan Tan Ping-Heng[†]

(State Key Laboratory of Superlattices and Microstructures, Institute of Semiconductors Chinese Academy of Sciences, Beijing 100083, China)

(Received 14 December 2012; revised manuscript received 8 January 2013)

Abstract

The optical and electronic properties of two-dimensional atomic crystals including graphene are closely dependent on their layer numbers (or thickness). It is a fundamental issue to fast and accurately identify the layer number of multilayer flakes of two-dimensional atomic crystals before further research and application in optoelectronics. In this paper, we discuss in detail the application of transfer matrix method to simulate the optical contrast of ultrathin flakes of two-dimensional atomic crystals and further to identify their thickness, where numerical aperture of microscope objective is considered. The importance of numerical aperture in the thickness determination is confirmed by the experiments on the graphene flakes. Furthermore, two lasers with different wavelengths can be serviced as light sources for the thickness identification of flakes of two-dimensional atomic crystals with a size close to the diffraction limit of the microscope objective. The transfer matrix method is found to be very useful for the optical-contrast calculation and thickness determination of flakes of two-dimensional atomic crystals on multilayer dielectric substrate.

Keywords: two-dimensional atomic crystals, multilayer, the transfer matrix, optical contrast

PACS: 07.05.Tp, 42.25.Bs, 68.65.Pq, 78.30.-j

DOI: 10.7498/aps.62.110702

* Project supported by the National Basic Research Program of China (Grant No. G2009CB929301), and the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11225421, 10934007).

[†] Corresponding author. E-mail: phtan@semi.ac.cn