

激光与光电子学进展

极性可控的激光加工氧化石墨烯基忆阻器(特邀)

刘素玲^{1,2}, 万正芬¹, 王雨田^{1,2}, 顾敏^{1*}, 张启明^{1**}¹上海理工大学光子芯片研究院, 上海 200093;²上海理工大学光电信息与计算机工程学院, 上海 200093

摘要 近年来,受生物神经系统结构和功能的启发,神经形态计算引起广泛兴趣。忆阻器可以通过其电荷或磁通量调节电导,与人脑突触作用机制相似,是神经形态计算最有前途的候选器件之一。提出一种基于飞秒激光加工氧化石墨烯基忆阻器的方法,通过调整器件两端扫描电压,实现了极性可控的电阻开关:低电压下,器件表现出单极性电阻开关特性,在 150 个循环扫描中呈现高度稳定性,且功耗仅有 0.75 nW;高电压下,器件呈现双极性开关特性。伴随测试次数的增加,器件整体电导逐步增加,同时分别讨论了两种电压下器件的开关机制。

关键词 极性可控;激光加工;氧化石墨烯;忆阻器

中图分类号 TN249

文献标志码 A

DOI: 10.3788/LOP232711

Polarity-Controllable Laser-Processed Graphene Oxide-Based Memristor (Invited)

Liu Suling^{1,2}, Wan Zhengfen¹, Wang Yutian^{1,2}, Gu Min^{1*}, Zhang Qiming^{1**}¹Institute of Photonic Chips, University of Shanghai for Science and Technology, Shanghai 200093, China;²School of Optical-Electrical and Computer Engineering, University of Shanghai for Science and Technology, Shanghai 200093, China

Abstract In recent years, neuromorphic computing, inspired by the structure and function of biological nervous systems, has gained substantial attention. Memristors, which are capable of modulating conductivity via electric charge or magnetic flux, mimic synaptic interactions in the human brain, making them promising candidates for neuromorphic computing. This study proposes a method using femtosecond laser-processed graphene oxide memristors. Adjusting the scanning voltage at both device ends achieves polarity-controlled resistance switching. The device exhibits unipolar resistance switching at low voltages and stability over 150 cycles with a power consumption of only 0.75 nW. At higher voltages, bipolar switching occurs with increased conductivity over the test cycles. This study explores switching mechanisms under two voltage conditions, thus providing a comprehensive understanding of these mechanisms. This innovative approach using femtosecond laser-processed graphene oxide memristors shows promise for neuromorphic computing, offering efficient performance, stability, and adaptability across voltage scenarios.

Key words polarity-controllable; laser processing; graphene oxide; memristor

1 引言

芯片行业长期以来均遵循摩尔定律,该定律指出集成电路芯片的性能大约每两年提升一倍,同时价格下降一半^[1]。但经过几十年的发展,驱动摩尔定律的光刻技术正面临突破衍射分辨率极限、高灵敏光刻胶等关键技术瓶颈,目前的芯片已经接近物理尺寸极限,芯片性能很难再有更大的提升^[2-3]。另一方面,近年来

随着人工智能和神经形态应用的兴起,特别是聊天机器人 ChatGPT 的盛行,神经形态计算备受瞩目^[4]。基于软件的神经形态计算往往需要借助超高算力的计算机,传统冯·诺依曼架构计算机中的计算单元和存储单元为独立的物理结构^[5],二者频繁的数据传输不仅降低了系统的计算效率,还增加了能耗,算力远远无法满足神经形态计算的巨大需求。要从根本上解决该问题,需要从基础器件、电路、架构及系统等方面进行变

收稿日期: 2023-11-10; 修回日期: 2023-11-28; 录用日期: 2023-12-03; 网络首发日期: 2023-12-11

基金项目: 国家自然科学基金(62105206,61975123)、上海市市级重大专项、上海市前沿科学研究中心(2021-2025 No. 20)、上海市科委专项(21DZ1100500)、科技部重点研发专项(2021YFB2802000)

通信作者: *gumin@usst.edu.cn; **qimingzhang@usst.edu.cn

革式的创新,发展高效的存算一体新型电子架构。人脑正是一种能够同时实现信息处理和存储的生物结构,突触是大脑运作的核心单元,人脑约有 $10^{10} \sim 10^{15}$ 个突触,通过突触间高密度的相互连接及权重的调节,实现学习和记忆功能^[6-7]。这意味着如果能找到一种与突触等效的电子器件,就有可能实现一种全新架构的计算范式。

1971年,蔡绍棠教授就预测了忆阻器这一第四类基本电路元件的存在^[8]。2008年,惠普实验室首次实现了基于 Pt/TiO₂/Pt 结构的忆阻器^[9]。自此关于这种非线性电器件的研究呈现指数级的增长,同时相关报道急剧增多^[10-11]。与其他现有的电路元件相比,忆阻器的电压-电流关系曲线是一条夹在原点的闭合迟滞回线,设备的电阻可以通过偏置历史调节,这种独特的电特性使得忆阻器存在一种内在的非易失性效应^[8]。忆阻器的物理实现为电子领域开启了一种全新的器件范式:一方面,它是阻性随机存取存储器的最有潜力的候选者之一;另一方面,忆阻器能够模拟突触的记忆行为,已经证明单个忆阻器就可以模拟一些重要的突触可塑性功能,例如兴奋性和抑制性、长时程增强和抑制、尖峰时序依赖性可塑性等,这为人工智能在神经形态领域开辟了道路^[12-13]。

迄今为止,科研人员在多种材料中发现了电阻开关现象,如硫族化物^[14]、有机材料^[15]、钙钛矿氧化物^[16]、二元过渡金属氧化物(ZnO^[17]、NiO^[10])、碳基材料^[18-19]等。石墨烯是一种新型的碳基纳米材料,具有良好的导电性、透明度、热导率、室温载流子迁移率、机械稳定性、生物兼容性、光电特性等。自2004年通过机械剥离制备出单层石墨烯以来,其一直是二维材料系统的领导者,同时也是最有前途的忆阻器候选材料之一^[20-21]。激光直写(DLW)是一种成本低、范围广、分辨率高的无掩模纳米加工技术,并已被证明可以直接还原氧化石墨烯(GO)^[22-28]。GO是一种部分氧化的石墨烯,其主要优势在于价格低廉且加工简单。由于含

有大量的含氧官能团,其具有良好的亲水性从而能够以薄膜的形式均匀地沉积在多种衬底上,被广泛用作激光加工制备石墨烯的前驱体材料。通过激光还原的还原氧化石墨烯(lrGO)具有与石墨烯相似的特性^[29-30],且相比直接使用石墨烯作为电极,lrGO制备成本更低。与石墨烯的金属性质相比,GO是一种良好的绝缘/半导体材料,可以作为忆阻器的候选材料。

本文提出一种基于飞秒激光加工GO基忆阻器的方法。所制备的Al-GO-lrGO结构的横向忆阻器在高低电压情况下具有不同开关极性:在低电压下,器件表现为稳定的单极性电阻开关,在150个开关循环中,两种开关状态之间保留清晰的窗口,并且具有超低(约0.75 nW)功耗;在高电压下,器件的IV特性曲线是双极性的,在循环测试中器件的电导呈现稳定的上升趋势。通过分析对比功能层材料GO的化学状态和物理外观发现,器件在低电压下通过导电丝的形成和断裂实现开关的转换,在高电压下,由于电场作用,GO被部分还原,使得器件的电导逐步提升。本研究为理解电阻开关机制提供了可靠的解释,同时基于Al-GO-lrGO结构的忆阻器具有超低功耗,为神经形态计算提供了可能。

2 器件制备与表征

2.1 制备流程

图1示意性概述了Al-GO-lrGO结构忆阻器的整体制备过程。简而言之,将4 mg/mL的GO胶体(4 mg/mL, Sigma-Aldrich Corp)原浆与去离子水进行简单的溶液混合,再经过1 h超声处理,获得密度为1 mg/mL的均匀GO前驱体悬浮溶液,由于GO易发生热还原,在超声混合过程中要保证水温不超过40℃。石英玻璃衬底的尺寸为25 mm×25 mm×1 mm,分别使用去离子水、乙醇和丙酮各超声清洗15 min,以得到表面干净的衬底。为增强GO溶液与衬底的黏附性,使用等离子体清洗机的HI挡位紫外处理30 min。这里采用滴注法的方法制备GO前驱体薄膜,蘸取

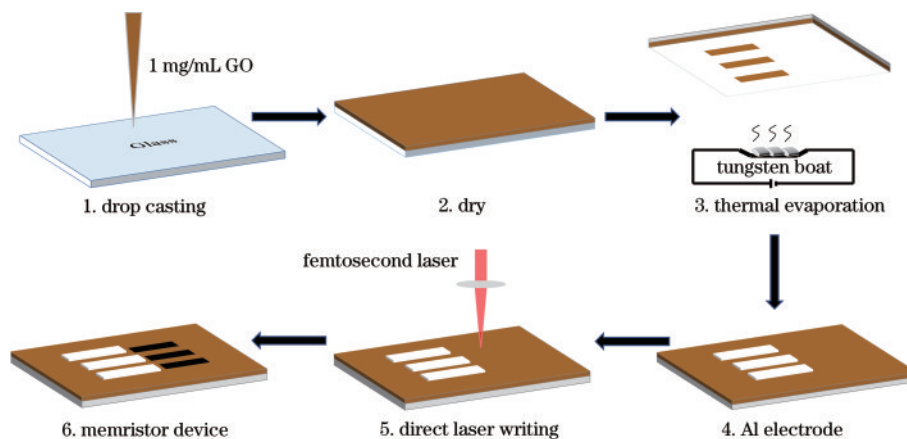


图1 Al-GO-lrGO平面忆阻器的制备流程

Fig. 1 The fabrication process of the Al-GO-lrGO planar memristor

500 μL 稀释好的 1 mg/mL 的 GO 悬浮液滴注到干净的二氧化硅基板上,然后放在通风橱内干燥 24 h 即可得到均匀的前驱体薄膜。将定制掩模版覆盖在 GO 薄膜上通过热蒸发真空镀膜仪蒸镀一层 50 nm 厚的纯金属铝制备来制备金属电极。IrGO 电极是通过飞秒激光还原 GO 获得的,激光写入可以精准控制 IrGO 的位置,通过控制飞秒激光加工设备的平移台使 Al 电极与激光焦点的间距为 50 μm ,得到基于 Al-GO-IrGO 结构的平面忆阻器。

2.2 表征分析

基于 Al-GO-IrGO 的横向结构忆阻器实物如图 2(a)所示。其中,左边银白色部分代表使用热蒸发方法制备的 Al 电极,而右侧黑色部分则为利用激光加工还原而成的 IrGO 电极。从图 2(b)截面扫描电子显微镜(SEM)图像可以获得 GO 前驱体薄膜的厚度,约为 875 nm。同时,通过原子力显微镜(AFM)测量了 GO 薄膜的表面粗糙度,为 32.4 nm,这表明 GO 薄膜具有良好的均匀性和平整度。

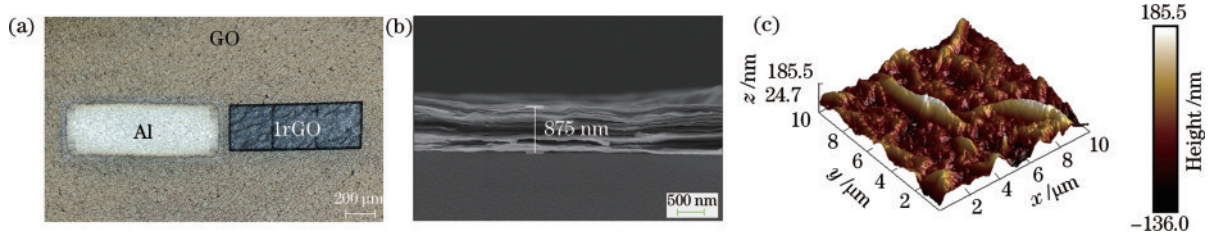


图 2 Al-GO-IrGO 结构忆阻器。(a)实物图;(b) GO 截面 SEM;(c) GO 表面 AFM

Fig. 2 The Al-GO-IrGO structure memristor. (a) Physical image; (b) cross-sectional SEM of GO; (c) AFM of GO surface

为了进一步确定飞秒激光作用于 GO 后的产物,通过 SEM 观察物质表面形态,图 3(a)、(b)分别显示

了 GO 和 IrGO 的表面形态,原始的 GO 薄膜呈现均匀的褶皱形态,IrGO 表面粗糙、孔隙率高,从图中还可

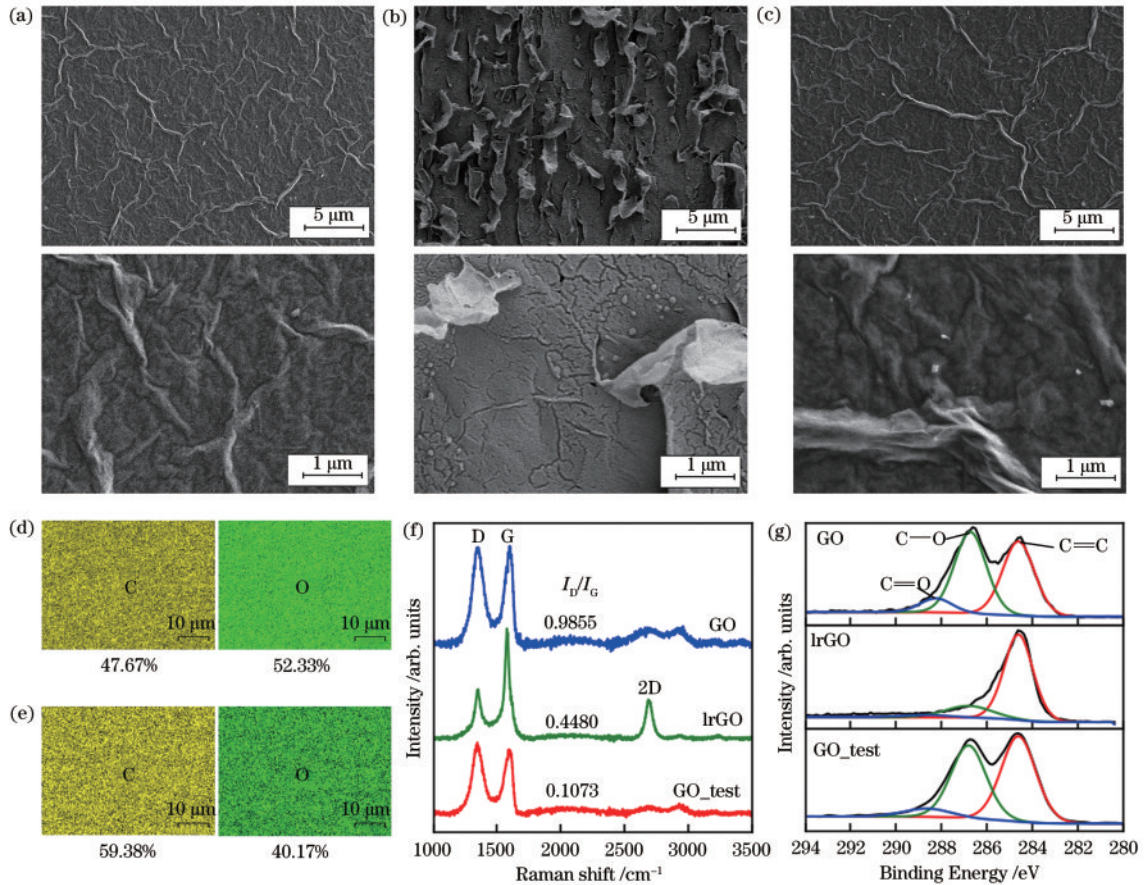


图 3 结构表征结果。(a) GO 的 SEM 图像;(b) IrGO 的 SEM 图像;(c)电测试后的 GO 的 SEM 图像;(d) GO 的 EDS 图像;(e) IrGO 的 EDS 图像;(f) GO、IrGO,以及 GO_test 的 Raman 光谱图像;(g) GO、IrGO 以及 GO_test 的 XPS 图像

Fig. 3 Structural characterization results. (a) SEM image of GO; (b) SEM image of IrGO; (c) SEM image of GO after electrical testing; (d) EDS image of GO; (e) EDS image of IrGO; (f) Raman spectra of GO, IrGO, and GO_test; (g) XPS spectra of GO, IrGO, and GO_test

以看到激光刻画路径,在激光作用的中心区域,由于激光还原过程气体的快速释放,氧化石墨烯表面出现剥离或脱落现象。通过能量色散 X 射线光谱(EDS)可以获得 GO 中的 C、O 原子的分布情况,从图 3(d)、(e)可以看到,前驱体薄膜的 C、O 元素均匀分布,说明其具有良好的平整度和均匀性,激光直写后的 lrGO 中 O 原子相比前驱体薄膜明显减少,同时从 EDS 的定量分析结果中也可以看到,激光直写后 O 原子减少了约 12 个百分点,这充分说明了激光作用可以有效调控 GO 的含氧量。此外,拉曼光谱被用于分析晶体化合物信息,GO 的特征拉曼峰一般由位于 1350 cm^{-1} 的 D 峰和 1580 cm^{-1} 的 G 峰组成,D 峰通常被认为是 GO 的无序振动峰,用于表征材料中的结构缺陷或边缘,G 峰则是由 sp^2 碳原子的面内振动引起的,是石墨烯的典型特征。图 3(f)中,GO 的 D 带和 G 带强度比 (I_D/I_G) 经激光照射后由 0.9855 降低至 0.4480,这一结果明确表明,激光照射处理减少了 GO 样品中的结构缺陷,并有效去除了含氧官能团。此外,拉曼光谱还揭示了在 lrGO 的光谱中观察到的一些高度有序的特征。通过 X 射线光电子能谱(XPS)表征 GO 的表面化学成分和电子结构,比较 GO 和 lrGO 之间与氧相关的化学键强度变化可以有效测量激光的还原程度。GO 的高分辨率 XPS C1s 谱可以解卷积为 3 个峰,分别以 284.6 (C=C 组)、286.9 (C—O 组) 和 288.7 eV (C=O 组) 为中心,如图 3(g) 所示,与氧相关的 C—O 峰和 C=O 峰的强度都急剧降低,这表明成功去除了 GO 中的含氧基团,激光直写对 GO 进行了深度光还原。

2.3 实验设备

双光束飞秒激光光刻系统是商业 DLW 系统 (Nanoscribe),激光波长为 780 nm,激光峰值功率在 0~60 mW 之间,重复频率为 80 MHz,激光扫描速度为 40 mm/s,物镜数值孔径(NA)为 0.5。lrGO 是在激光功率为 30 mW、扫描速度为 40 mm/s 的条件下还原 GO 所获得的。器件的电学测试主要使用 Keithley 4200 半导体参分析仪 (Tektronix, USA) 和探针台 (Cascade)。金属电极是通过 PD-300 高真空热蒸发镀膜仪蒸镀制备的。通过扫描电子显微镜 (ZEISS GeminiSEM 300) 来观察激光加工前后样品表面的变化以及 GO 样品的截面厚度。原子力显微镜型号为 Bruker Dimension Icon。通过在 532 nm 激光激发下使用 WITEC Alpha 300 RA 的共焦拉曼系统获得拉曼光谱,参数设置为:激光功率衰减为 5%,采集时间为 10 s。X 射线光电子能谱是通过 Thermo Fischer (ESCALAB 250Xi, USA) 获得的。实验中还使用到了其他辅助设备,如 KQ-250DE 型数控超声波清洗器等。

3 分析与讨论

为了表征器件的电学开关性能,以金属铝为正电极,lrGO 为负电极,在室温 (298 K) 下使用 Keithley 4200 半导体参数分析仪在直流电压扫描模式下给器件施加 0 V 至 1 V 至 0 V,再由 0 V 至 -1 V 至 0 V 的扫描电压,电压扫描的步长为 0.05 V,值得一提的是,为了保护器件不被永久性击穿,需要设置限制电流,此处限制电流设置为 1 mA。器件的直流电压扫描特性曲线如图 4(a) 所示,在正向扫描期间,器件的初始状态为高阻态,随着电压增大,在电压为 1 V 左右时,器件突然从高阻态转变为低阻态并保持在低阻态,然后随着电压减小,在 0.1~0.2 V 左右,器件的电阻恢复到初始的高阻状态。器件的置位和复位发生在同一电压极性下,表现出单极性电阻开关切换行为,且无需形成过程。同时器件的电学特性还具有高度的对称性,不管是正向扫描还是反向扫描,器件的设置 (set) 和重置 (reset) 电压几乎一致。通过 IV 特性曲线可以发现器件具有大约为 0.75 nW 的超低功耗。接下来进行耐久性测试,在 150 个周期内的重复扫描 [图 4(b)] 证实了器件具有良好的稳定性和可复现性。在每次正扫描周期中读取周期内的最大电阻值和最小电阻值,得到器件高低阻态的阻值分布图,如图 4(c) 所示。尽管器件的高阻态和低阻态的电阻值都显示出轻微的波动,但可以看出,在 150 个循环中,“ON”和“OFF”状态之间存在明显的窗口,器件的开关比在 2~3 之间。

GO 的高分辨率 XPS O1s 光谱 [图 4(d)] 可被解析为 3 个峰 O1s A、O1s B、O1s C,分别对应 GO 中的吸附氧峰、氧空位峰、晶格氧峰,它们对应的中心位置分别为 529.42、531.13、532.00 eV。可见,GO 中含有大量含氧官能团或氧缺陷,因此,所提这种单极性开关行为的机制与有源层中氧官能团和氧缺陷组成的导电丝的形成和断裂有关。在图 4(e) 的正向扫描过程中,带电官能团在电压形成的电场下发生有序移动,导电丝逐步形成,器件由高阻态转变为低阻态,实现了“reset”过程,然而在 0.1~0.2 V 电压区间,由于电场力过于弱小,氧空位由于浓度差异导致的自由扩散作用大于电场的聚集作用,导电丝断裂,器件自发回到高阻态完成“set”过程,反向扫描过程也是同样的原理,因而器件呈现对称性单极性电阻开关现象。

有趣的是,器件在高电压情况下表现出了与低电压下完全不一样的电学特性。依旧以金属铝为器件的正电极,lrGO 电极接地,给器件施加 0 V 至 10 V 至 0 V,再由 0 V 至 -10 V 至 0 V 的直流电压扫描,器件的阻态走势如图 5(a) 所示,器件的初始状态为低阻态,随着加压历史切换到高阻态,在正向扫描期间完成了“reset”过程。接下来再施加反向电压扫描,器件首先保持在高阻态,然后在返回过程中由高阻态转向低阻态,反向扫描过程实现了“set”过程,相比低电压下

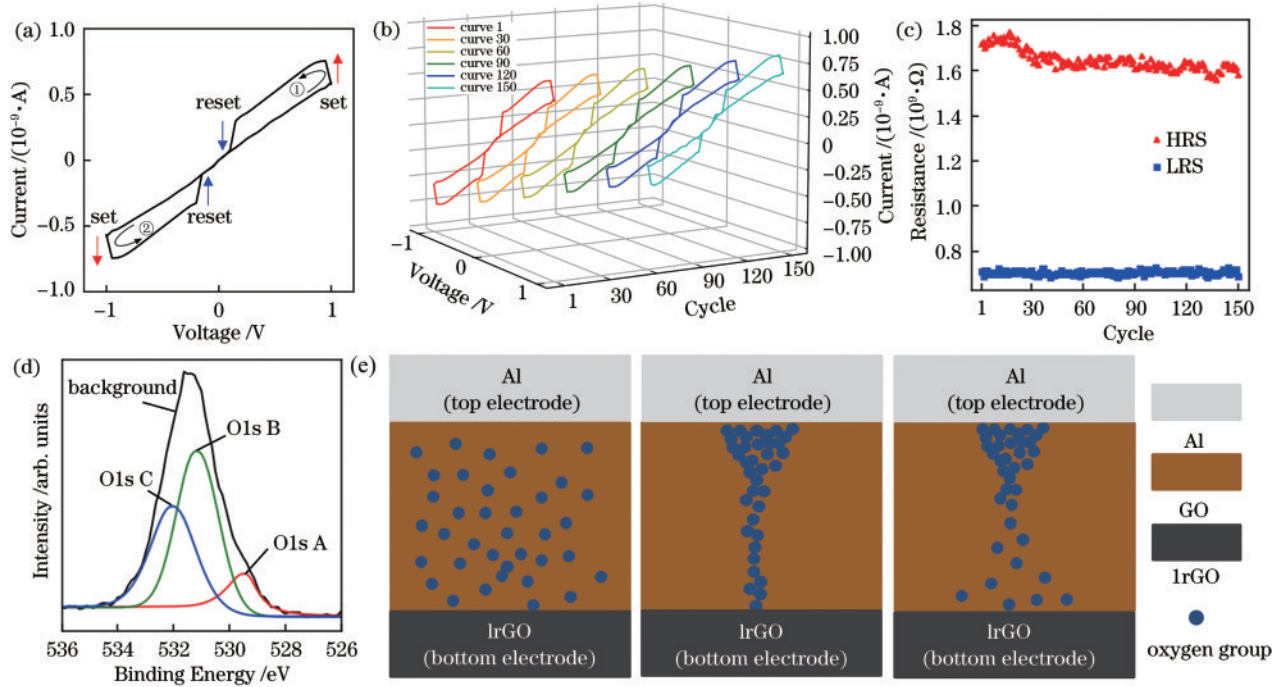


图 4 低电压测试。(a)低电压扫描下器件的IV曲线;(b)150次循环扫描IV曲线的3D图;(c)150次循环扫描高低阻态阻值分布;(d)GO高分辨率XPS O1s光谱图;(e)低电压下器件的开关机制
 Fig. 4 Low voltage test. (a) IV curve of the device under low-voltage scanning; (b) 3D plot of IV curves for 150 cycles of scanning; (c) distribution of high and low resistance states for 150 cycles of scanning; (d) high-resolution XPS O1s spectrum of GO; (e) switching mechanism of the device under low-voltage conditions

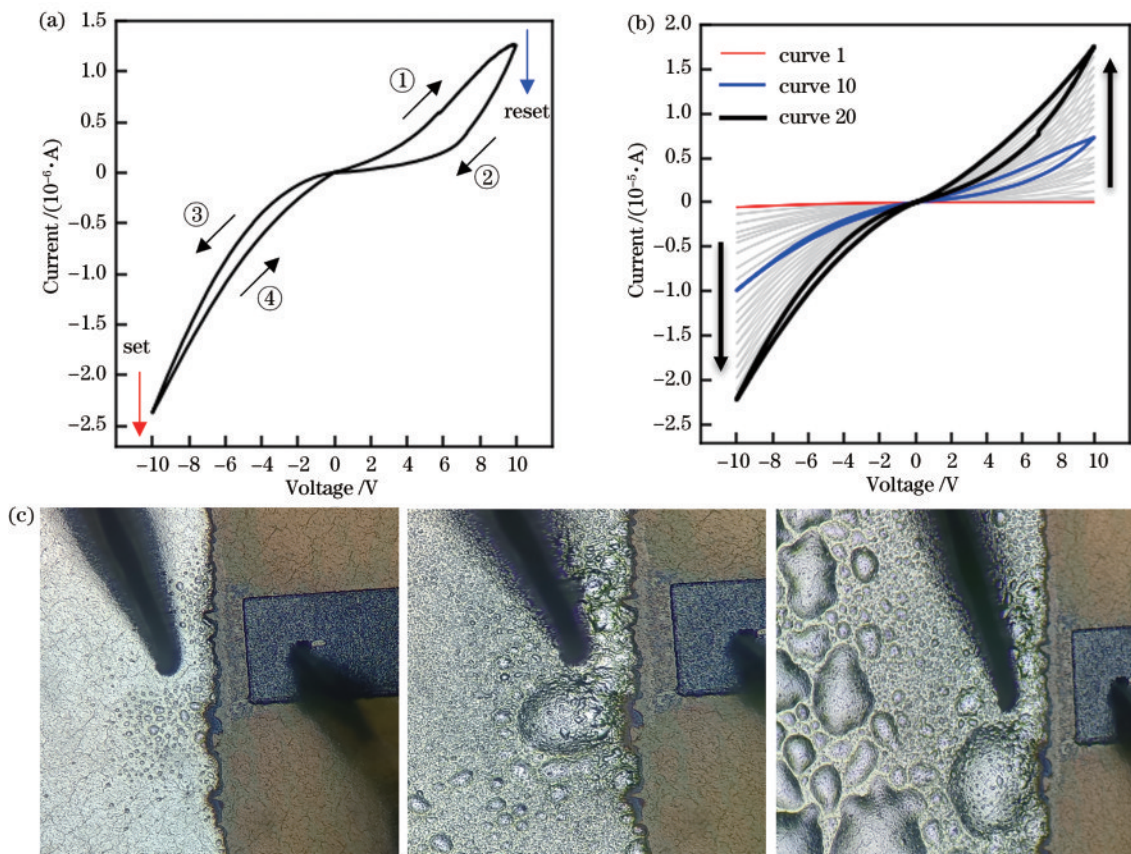


图 5 高电压测试。(a)高电压测试的IV曲线;(b)20次循环扫描IV曲线;(c)高电压测试过程中铝电极表面变化
 Fig. 5 High voltage test. (a) IV curve of the high-voltage test; (b) IV curve of 20 cycles of scanning; (c) surface changes of the Al electrode during the high-voltage test process

的直流扫描,高电压下的“set”和“reset”行为分别发生在极性相反的两种电压偏置下,呈现出了双极性的电阻开关特性。不仅如此,在给器件进行可再现性测试时,发现器件的电导值总是在前一次扫描的基础上增大,在连续 20 次 IV 扫描中,器件电导持续上升。

为说明高电压下器件开关切换的机制,我们对比了测试前后的有源层即 GO 层(所有相关表征测试结果用“GO_test”标注)的变化,由于器件是二维的横向结构,中间层直接暴露在空气中,可以通过表征工具直接对中间层进行各种表征分析。图 3(c)为中间层 GO 在高电压测试后的 SEM 图像,可以看出,高电压电测试后,GO 表面粗糙,且有细小的针孔状出气口。同时在测试过程中,通过探针台上的显微镜可以观察到金属铝电极表面发生了明显的变化,如图 5(c)所示,在高电压下铝电极表面鼓起了大量气泡,且随着电测试循环的增加,气泡的数量和面积都有所增加,而在低电压测试情况下,铝电极表面始终没有变化。这说明在高电压下,GO 发生了不可逆的化学反应并产生了气体。为进一步确定介质层 GO 的具体变化,进行了拉曼光谱和 XPS 光电子能谱测试。图 3(f)的拉曼光谱显示,电测试后 GO 的 D 模式相对增强, $I_D/I_G = 1.1073$, 说明 sp^2 域的相对增加并伴随缺陷密度的增加,表明电测试后 GO 被部分还原。通过 XPS 测试进一步量化了还原程度,如图 3(g)所示,位于 286.9 eV 处的 C—O 和 288.9 eV 处的 C=O 两种化学键明显减弱了,证实了 GO 的还原,从而提高了器件的导电率。因此,高电压下循环测试曲线的电流总是会在上一次测试的基础上增大。

4 结 论

提出一种基于飞秒激光加工的 Al-GO-IrGO 横向结构忆阻器。结果表明,激光能够有效调控氧化石墨烯的含氧量,从而还原氧化石墨烯。通过改变施加在器件上的电压,可以控制器件的开关极性。在低电压情况下,GO 中的缺陷或氧空位在电场的作用下逐步形成导电丝,完成“set”过程后,由于扩散作用,导电丝断开并自发地回到高阻态,实现“reset”。然而,在高电压下,GO 会被电场逐步还原并释放气体,因此迟滞回线总会在前一次扫描的基础上增加。这些发现为理解忆阻器的工作原理、优化器件性能,以及未来在电子器件和存储器件领域中的应用提供了重要的实验基础和理论支持。

参 考 文 献

- [1] Schaller R R. Moore's law: past, present and future[J]. IEEE Spectrum, 1997, 34(6): 52-59.
- [2] Moore S K. Another step toward the end of Moore's law: Samsung and TSMC move to 5-nanometer manufacturing[J]. IEEE Spectrum, 2019, 56(6): 9-10.
- [3] Fang Y X, He Y F. Resolution technology of lithography machine[J]. Journal of Physics: Conference Series, 2022, 2221(1): 012041.
- [4] Wang Y T, Pan Y H, Yan M, et al. A survey on ChatGPT: AI-generated contents, challenges, and solutions [J]. IEEE Open Journal of the Computer Society, 2023, 4: 280-302.
- [5] von Neumann J. First draft of a report on the EDVAC[J]. IEEE Annals of the History of Computing, 2002, 15(4): 27-75.
- [6] Kuzum D, Yu S M, Wong H S. Synaptic electronics: materials, devices and applications[J]. Nanotechnology, 2013, 24(38): 382001.
- [7] Markram H, Gerstner W, Sjöström P J. A history of spike-timing-dependent plasticity[J]. Frontiers in Synaptic Neuroscience, 2011, 3: 4.
- [8] Chua L. Memristor-the missing circuit element[J]. IEEE Transactions on Circuit Theory, 1971, 18(5): 507-519.
- [9] Strukov D B, Snider G S, Stewart D R, et al. The missing memristor found[J]. Nature, 2008, 453: 80-83.
- [10] Liu B, Liu Z W, Chiu I S, et al. Programmable synaptic metaplasticity and below femtojoule spiking energy realized in graphene-based neuromorphic memristor[J]. ACS Applied Materials & Interfaces, 2018, 10(24): 20237-20243.
- [11] Hadiyal K, Ganesan R, Rastogi A, et al. Bio-inspired artificial synapse for neuromorphic computing based on NiO nanoparticle thin film[J]. Scientific Reports, 2023, 13: 7481.
- [12] Sharbati M T, Du Y H, Torres J, et al. Low-power, electrochemically tunable graphene synapses for neuromorphic computing[J]. Advanced Materials, 2018, 30(36): 1802353.
- [13] Fu T D, Liu X M, Gao H Y, et al. Bioinspired bio-voltage memristors[J]. Nature Communications, 2020, 11: 1861.
- [14] Yan X B, Zhao Q L, Chen A P, et al. Vacancy-induced synaptic behavior in 2D WS₂ nanosheet-based memristor for low-power neuromorphic computing[J]. Small, 2019, 15(24): 1901423.
- [15] Kim M K, Lee J S. Short-term plasticity and long-term potentiation in artificial biosynapses with diffusive dynamics[J]. ACS Nano, 2018, 12(2): 1680-1687.
- [16] Li R Z, Dong Y B, Qian F S, et al. CsPbBr₃/graphene nanowall artificial optoelectronic synapses for controllable perceptual learning[J]. Photonix, 2023, 4(1): 4.
- [17] Chen F D, Zhang S, Hu L, et al. Bio-inspired artificial perceptual devices for neuromorphic computing and gesture recognition[J]. Advanced Functional Materials, 2023, 33(24): 2300266.
- [18] He C L, Zhuge F, Zhou X F, et al. Nonvolatile resistive switching in graphene oxide thin films[J]. Applied Physics Letters, 2009, 95(23): 232101.
- [19] Chen M, Wan Z F, Dong H, et al. Direct laser writing of graphene oxide for ultra-low power consumption memristors in reservoir computing for digital recognition [J]. National Science Open, 2022, 1(3): 20220020.

- [20] Hui F, Grustan-Gutierrez E, Long S B, et al. Graphene and related materials for resistive random access memories[J]. *Advanced Electronic Materials*, 2017, 3(8): 1600195.
- [21] 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.
- [22] Wan Z F, Streed E W, Lobino M, et al. Laser-reduced graphene: synthesis, properties, and applications[J]. *Advanced Materials Technologies*, 2018, 3(4): 1700315.
- [23] Kang S, Evans C C, Shukla S, et al. Patterning and reduction of graphene oxide using femtosecond-laser irradiation[J]. *Optics & Laser Technology*, 2018, 103: 340-345.
- [24] Wan Z F, Nguyen N T, Gao Y S, et al. Laser induced graphene for biosensors[J]. *Sustainable Materials and Technologies*, 2020, 25: e00205.
- [25] Wan Z F, Chen X, Gu M. Laser scribed graphene for supercapacitors[J]. *Opto-Electronic Advances*, 2021, 4 (7): 200079.
- [26] Wan Z F, Umer M, Lobino M, et al. Laser induced self-N-doped porous graphene as an electrochemical biosensor for femtomolar miRNA detection[J]. *Carbon*, 2020, 163: 385-394.
- [27] Wan Z F, Wang S J, Haylock B, et al. Localized surface plasmon enhanced laser reduction of graphene oxide for wearable strain sensor[J]. *Advanced Materials Technologies*, 2021, 6(5): 2001191.
- [28] Wan Z F, Zhang K E, He Y, et al. Graphene lithography based on laser reduction and plasma oxidization for rewritable hologram imaging[J]. *Advanced Optical Materials*, 2023, 11(22): 2300872.
- [29] Deng N Q, Tian H, Ju Z Y, et al. Tunable graphene oxide reduction and graphene patterning at room temperature on arbitrary substrates[J]. *Carbon*, 2016, 109: 173-181.
- [30] Sokolov D A, Shepperd K R, Orlando T M. Formation of graphene features from direct laser-induced reduction of graphite oxide[J]. *The Journal of Physical Chemistry Letters*, 2010, 1(18): 2633-2636.