

金属衬底上石墨烯的红外近场光学*

岑贵¹⁾ 张志斌²⁾ 吕新宇¹⁾ 刘开辉²⁾ 李志强^{1)†}

1) (四川大学物理学院, 成都 610065)

2) (北京大学物理学院, 北京 100871)

(2019年10月9日收到; 2019年11月8日收到修改稿)

对石墨烯/铜体系开展了系统性的近场光学实验研究, 成功观测到了区别于铜衬底的、来自石墨烯的近场光学响应信号, 发现在表面台阶几何参数相同的铜衬底上的不同石墨烯样品表现出了截然不同的近场光学响应.

关键词: 石墨烯, 金属衬底, 近场光学**PACS:** 78.67.Wj, 07.79.Fc**DOI:** 10.7498/aps.69.20191598

1 引言

表面等离极化激元是材料表面自由电子的集体振荡与光波(电磁波)耦合形成的一种沿着表面传播的近场电磁波, 它对基础科学研究以及许多应用领域具有重要意义^[1-5]. 在基础物理方面, 对等离激元的探测可以研究多体相互作用、能带结构、非平衡态过程、空间色散、拓扑极化激元等重要物理问题; 此外, 等离激元在光电探测器、电光调制器、亚衍射聚焦与成像、光发射和放大等许多领域具有巨大应用价值. 金属材料等离激元的能量通常位于可见光到近红外范围, 而石墨烯作为一个非常独特的研究等离激元的体系, 其能量范围处在中红外到太赫兹波段, 这使得红外等离激元的应用成为可能, 填补了所谓的“太赫兹空缺”^[4]. 此外, 石墨烯等离激元具有良好的可控性, 通过化学掺杂或者门电压可以调控其载流子浓度, 从而表现出了非常丰富而独特的物理现象, 如电压可控的色散行为、超强的电磁场约束能力、与其他极化激元的杂化等^[1,4,5]. 由于等离激元涉及电子的集体振荡, 电子

和电子间的多体相互作用就显得十分重要. 最近的光学研究表明^[6], 在石墨烯/氮化硼/金属多层结构中, 金属的存在使石墨烯等离激元的面内波矢可以增强至接近费米波矢, 在此情况下石墨烯的光学电导率强烈依赖于动量, 表现出明显的量子非局域性和能带重整化等多体效应, 这些效应是石墨烯和金属相互作用引起的. 最近的理论研究指出^[7], 把石墨烯直接放置在金属上时, 金属对石墨烯中电子-电子相互作用的屏蔽可以引起许多新的物理效应. 在不考虑金属能带与石墨烯狄拉克费米子耦合的条件下, 由于金属的屏蔽作用, 石墨烯会出现声学等离激元, 其朗道阻尼(Landau damping)惊奇得小, 这些等离激元对光在垂直方向的约束相比于石墨烯/电介质系统中的等离激元有极大地提高^[8]. 此外理论预言^[9], 在石墨烯与金属耦合的系统中存在耦合的TM偏振的石墨烯-金属等离激元, 其色散依赖于石墨烯和金属之间缓冲层的厚度以及石墨烯的费米能级. 以上实验和理论研究表明, 在石墨烯/金属系统中石墨烯的基本行为发生完全改变, 浮现新的量子行为, 所以石墨烯/金属体系是一个研究石墨烯的等离激元和多体相互作用的重

* 国家自然科学基金(批准号: 11874271)资助的课题.

† 通信作者. E-mail: zhiqiangli@scu.edu.cn

要平台.

基于原子力显微镜 (atomic force microscope, AFM) 的散射型扫描近场光学显微技术 (scattering-type scanning nearfield optical microscopy, s-SNOM) 是一种非常有效的研究等离激元的实验技术, 它具有远超传统光学阿贝衍射极限的空间分辨率, 其空间分辨率只依赖于原子力显微镜针尖的半径, 而与光的波长无关, 因此, s-SNOM 成为研究许多量子材料以及光与物质相互作用的有利实验工具^[1-3,5]. 近年来, 关于石墨烯等离激元的 s-SNOM 实验研究有许多重要进展, 包括电压可调的石墨烯等离激元^[10,11]、石墨烯/h-BN 的超晶格能带结构^[12]、石墨烯/h-BN 的杂化等离激元-声子极化激元调控^[13-15]、双层和三层石墨烯畴壁 (domain wall) 的孤子 (soliton) 和一维拓扑导电态^[16-18] 等.

如上所述, 金属衬底上石墨烯的近场光学研究具有十分重要的意义, 但是这一体系的近场光学研究目前在实验上没有详细报道. 金属强大的导电性增强了光的散射强度, 进而增强了 s-SNOM 信号. 在石墨烯/金属体系中, 石墨烯的近场光学信号是否会被金属淹没? 金属衬底上石墨烯等离激元的量子行为是什么? 这些重要物理问题目前在实验上还没有明确和详细的研究结果. 因此, 本文对生长在铜衬底上的石墨烯进行了系统性的近场光学研究.

2 实验手段和样品

s-SNOM 的原理如图 1 所示, 入射激光 E_{in} (实验中, 激光波长约为 $10.9 \mu\text{m}$) 聚焦在以频率 Ω 和振幅 A 振动的 AFM 探针尖端和样品之间, 其中 $H(t)$ 是 t 时刻针尖与样品的距离, 探针以轻敲模式 (tapping mode) 工作, 不与样品接触. 聚焦在针尖和样品之间的光可以在距离样品表面几十到几百纳米的近场内激发局域电磁场, 该电磁场沿垂直于样品表面的方向呈指数衰减. 局域电磁场被针尖散射到远场, 通过分析被针尖散射到远场的信号 E_{sc} 可以得到有关于样品的光学常数 (介电函数、光学电导率) 等信息^[2,3,19]. s-SNOM 测得的信号正比于针尖的有效极化率 (effective polarizability), 其偏振方向垂直于样品表面, 影响极化率的因素主要有两个: 样品的光学常数和针尖-样品的耦合强度.

实验中利用化学气相沉积法 (chemical vapor

deposition, CVD) 生长得到高质量石墨烯/铜^[20-22] 和氮化硼/铜^[23] 样品. 对于石墨烯/铜样品, 首先, 将原始的工业铜箔 (厚度为 $25 \mu\text{m}$, 纯度为 99.8%) 水平放置在 CVD 管式炉中, 升温至 $1020 \text{ }^\circ\text{C}$, 并在还原性气体 (氩气: 500 sccm , H_2 : 10 sccm) 氛围中保持 30 min , 得到单晶铜衬底. 然后, 通入 1 sccm 的甲烷, 进行单晶石墨烯的生长. 生长过程结束后, 在上述还原性气体氛围下自然降至室温,

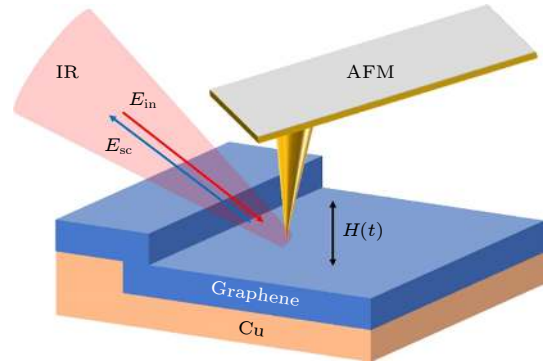


图 1 s-SNOM 示意图. 一束红外光 (IR) 聚焦于针尖和样品之间, 针尖以频率 Ω 和振幅 A 在竖直方向振动, 针尖与样品的距离为 $H(t) = H_0 + A(1 + \cos(\Omega t))$, 其中 H_0 表示针尖和样品的最小距离, 测量信号是针尖-样品系统的散射光 E_{sc} .

Fig. 1. Schematic of s-SNOM. An infrared light is focused between the sample and the probe tip, which oscillate vertically with frequency Ω and amplitude A . The tip-sample distance is $H(t) = H_0 + A(1 + \cos(\Omega t))$, where H_0 is the minimum tip-sample distance. Incident light E_{in} interacts with tip-sample system, and is elastically scattered. The scattered field E_{sc} encodes the properties of the sample surface.

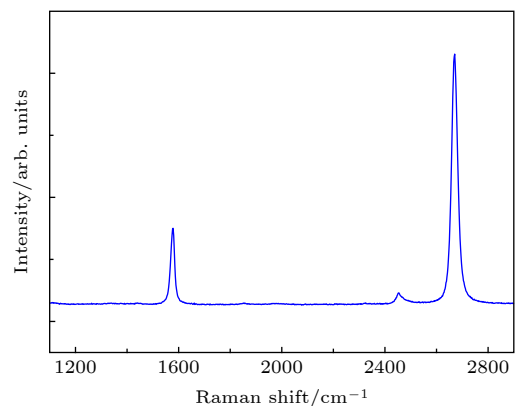


图 2 生长在铜衬底上的石墨烯拉曼光谱. 2D 峰呈现了单个的洛伦兹峰型, 表明是单层石墨烯; D 峰没有出现, 表明是无缺陷的高质量石墨烯.

Fig. 2. Raman spectra of graphene on Cu substrate. The Lorentzian shape of 2D peak manifested that it is a monolayer graphene. Absence of D peak indicated its defect-free and high-quality nature.

即可得到单晶铜衬底上的单晶石墨烯. 同时, 对生长的石墨烯进行的拉曼表征表明, 石墨烯的 2D 峰呈现单个的洛伦兹峰型, 没有 D 峰出现, 如图 2 所示, 因此是无缺陷的高质量单层石墨烯. 对于氮化硼/铜样品, 利用文献 [23] 中方法获得 h-BN/Cu 样品并对其进行表征.

3 实验结果与讨论

实验已经证明, 直接暴露在空气中的铜箔会在其表面生成一层铜氧化物, 因此测不到铜的纯的近场性质, h-BN 可以防止铜箔暴露在空气中使其表面被氧化, 这是选择测量 h-BN/Cu 而非直接测量铜箔的原因之一. 图 3(a) 是 h-BN/Cu 台阶的 s-SNOM 成像示意图, 其中红色的圆表示直径 D 为 25 nm 的针尖尖端, 黄色和深蓝色区域分别表示铜台阶和样品表面, 圆圈中的数字标签分别表

示扫描台阶过程中针尖四个代表性位置; 图 3(b) 是图 3(a) 中在位置②处的台阶与针尖尖端附近的局部放大区域, 红色箭头指出“热点”形成的位置; 图 3(c) 是实验测量的 h-BN/Cu 台阶边缘的近场成像图, 左侧的上、下两图分别是该样品的形貌 (topography) 和 s-SNOM 信号 (实验中为三阶解调信号振幅 A_3), 右侧对应左侧图中蓝色实线处的形貌和 s-SNOM 信号. 从图 3 可见, 对应形貌平台上的 s-SNOM 信号大小基本不随位置变化 (水平红色虚线), 但是在台阶下方边缘 (左起第一条黑色虚线) 和台阶中部 (左起第二条黑色虚线) 分别出现峰值 (亮纹) 和谷值 (暗纹), 暗纹宽度与台阶宽度基本一致.

由于 h-BN 在波长约 10.9 μm 的范围内没有声子和其他光学响应, 这个波长下 h-BN 对 s-SNOM 信号没有贡献, 这是选择测量 h-BN/Cu 而非纯铜箔的原因之一, h-BN/Cu 的测量结果可以用针尖

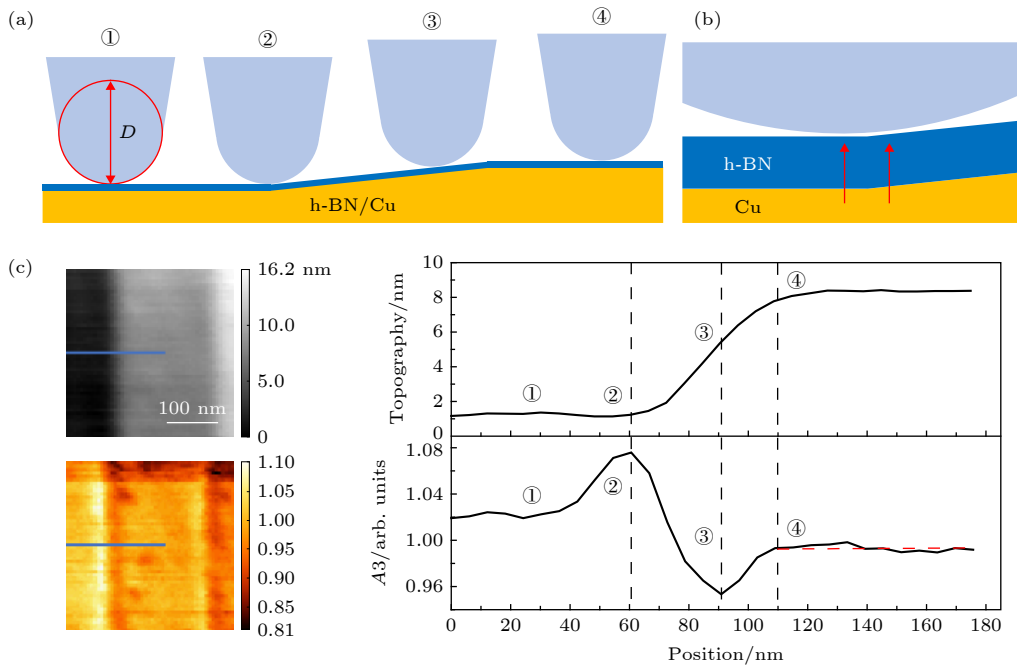


图 3 h-BN/Cu 台阶成像图 (a) 针尖扫过台阶时的不同位置, ①和④表示针尖处于远离台阶的位置, ②和③分别表示信号峰值 (两个热点形成处) 和信号谷值对应的针尖位置, 图中的针尖与台阶以等比例画出, 针尖中的红色圆圈表示直径 $D = 25$ nm 的针尖尖端; (b) (a) 中位置②处针尖与台阶边缘间隔的局部放大图, 红色箭头指出热点形成的位置; (c) 左侧: h-BN/Cu 台阶的形貌 (上) 和 s-SNOM 成像 (下); 右侧: 左侧图中蓝色实线对应的形貌 (上) 和 s-SNOM 信号 (下), 其中标签①—④与 (a) 中的标签相对应, 黑色和红色虚线分别指出 s-SNOM 信号的不同特征 (峰值、谷值和平台)

Fig. 3. s-SNOM images of a h-BN/Cu step: (a) Different tip positions when the tip is scanned across a step. ① and ④ are the tip positions far away from the step, ② and ③ are the positions where a peak (corresponding to the formation of two hot-spots) and a dip appear in the s-SNOM signal, respectively. The tip and the step are shown in proportion. Red circle drew on the tip represents its apex with diameter of $D = 25$ nm; (b) Zoom-in on the gap between tip and sample at tip position ② in (a), which shows the two hot-spots by red arrows; (c) left panel: topography (upper) and s-SNOM image (lower) of h-BN/Cu at a surface step. Right panel: topography (upper) and s-SNOM line-profiles (lower) corresponding to the blue solid lines in the left panel. Labels ①–④ are corresponding to those in (a). Black and red dash lines indicate different features (peak, dip and plateau) in the s-SNOM line-profile.

与铜衬底表面的台阶之间形成的热点来解释^[24]. 热点是尖端或锐利物体附近局域近场电磁场的高强度区域, 当针尖靠近下方样品或者锐利的样品边缘时都会产生热点^[25], 在热点处针尖的有效极化率远大于其他平坦的表面区域, 因此会产生很大的 s-SNOM 信号^[2,3,19]. h-BN 的数据可以分以下四个阶段理解: 1) 针尖处于远离台阶的样品上方时只形成一个热点, 此时近场光学信号如①所示, 由于样品的均匀性, 针尖远离台阶时 s-SNOM 信号强度大体上不变; 2) 近期研究表明^[24], 在非共振材料 (h-BN 在激光波长约 10.9 μm 下没有共振激发的声子极化激元) 中, 针尖到达台阶边缘时形成两个热点, 其中一个位于针尖正下方和样品之间, 另一个位于针尖侧面和台阶边缘之间 (图 3(b)), 因此两个热点的形成增强了总的 s-SNOM 信号, 出现如②所示的峰值; 3) 在台阶中部的过程中, 针尖正下部的尖端远离样品表面, 针尖正下方的热点消失, 此时只有针尖比较平的侧面与台阶中部的样品距离比较近, 由于针尖-样品整体电磁极化 (电磁场) 的偏振方向垂直于样品表面 (图 3(a) 中的竖直方向), 针尖侧面与台阶作用而带来的电磁场局域增强比针尖正下方的热点弱许多, 所以此时针尖的有效极化率比①减小, 散射信号也随之减小, 于是在台阶上出现如③所示的谷值; 4) 最后针尖离开台阶进入下一个平台, 下方形成一个热点, 与阶段①相似, 出现如④所示的信号. 基于以上分析, h-BN/Cu 的测量结果可以结合铜衬底上台阶的几何形状利用针尖与铜之间形成热点的物理图像解释^[24].

在相同的激光波长下, 对石墨烯/铜的台阶进行测量, 图 4 是石墨烯的近场光学成像图. 图 4(a) 显示, 石墨烯的 s-SNOM 信号和 h-BN 一样都同时出现了峰值和谷值, 并且峰值位置都对应于台阶的下方边缘 (图 4(a) 左起第一条黑色虚线, 阶段②). 对于 h-BN, 其谷值位置对应于台阶中部, 而石墨烯的谷值位置则对应于台阶的上方边缘 (图 4(a) 左起第二条黑色虚线), 即相对于 h-BN, 石墨烯的暗纹在位置上出现了“空间延迟”. 图 4(a) 中, 在台阶以右的平台区域 (阶段④), 石墨烯的信号在很大范围内仍然是谷值, 信号随着远离台阶而逐渐上升 (图 4(a) 水平红色虚线), 而 h-BN 在此平台区域的 s-SNOM 信号一直是一个常数 (图 3(c) 水平红色虚线), 石墨烯谷值的延迟宽度超过台阶宽度的三倍. 因此在石墨烯/铜中观测到了与 h-BN 不

同的行为, 这说明石墨烯的数据不能完全用针尖与铜衬底之间形成的热点来解释.

进一步发现对于衬底台阶高度和宽度都基本一致的两个石墨烯样品, 其近场光学信号可能截然不同. 观测到在针尖跨越衬底台阶时石墨烯/铜呈现出两种 s-SNOM 成像特征: 峰值谷值同时出现 (情况一), 单独出现峰值 (情况二). 图 4 展示了在高度和宽度基本一致的两个台阶处两个石墨烯样品表现出完全不同的光学响应, 其中图 4(a) 中 (情况一) 台阶高度和宽度分别约为 5.3 nm 和 50 nm, 图 4(b) 中 (情况二) 台阶的高度和宽度分别约为 5.5 nm 和 55 nm. 如上所述, 情况一的台阶在其下方边缘和上方边缘分别出现峰值和谷值, 而情况二的台阶在其上方边缘 (图 4(b) 左起第二条黑色虚线, 阶段④) 没有出现谷值却在台阶下方边缘单独出现一个峰值, 这说明在台阶尺寸相近的条件下, 石墨烯近场信号出现了不同特征. 需要说明的是, 在台阶尺寸 (高度和宽度) 和台阶方向 (扫描角度) 相同的其他样品上也观测到了这两种截然不同的结果, 因此可以排除因扫描角度带来的影响. 综合以上情况, 实验结果表明位于几何形状相近的两个台阶处的不同石墨烯样品可以呈现出完全不同的光学响应.

现在定性讨论石墨烯样品出现以上两种情况的可能解释. 铜衬底可能会影响石墨烯的掺杂 (doping) 和应力 (strain)^[26,27], 进而影响石墨烯的近场光学响应. 研究指出^[28], 石墨烯与 Cu(111) 和 Cu(100) 衬底的相互作用都会导致石墨烯狄拉克点偏移并且打开能隙. 石墨烯的掺杂源于与铜衬底之间发生的电荷转移, 掺杂程度与掺杂类型跟铜的晶面取向有关. 由于石墨烯与铜的热膨胀系数不匹配, 在样品生长的冷却过程会引入压缩应力, 而应力可能会引起材料的力学、电学和光学性质的改变. 据报道^[29], h-BN 中的局域应力区域会影响声子极化激元的传播, 使其在局域应力区域和无局域应力区域的 s-SNOM 信号有所区别. 基于以上研究结果, 预期石墨烯在衬底台阶的上下两个边缘和台阶两侧受到的应力可能不一样, 不同样品的掺杂也可能不一样, 应力和掺杂会导致石墨烯光电导率 (光学常数) 的改变, 进而影响石墨烯的近场光学响应.

石墨烯样品的 s-SNOM 实验数据中情况一和情况二峰值的形成原因可能与之前的报道一样^[24],

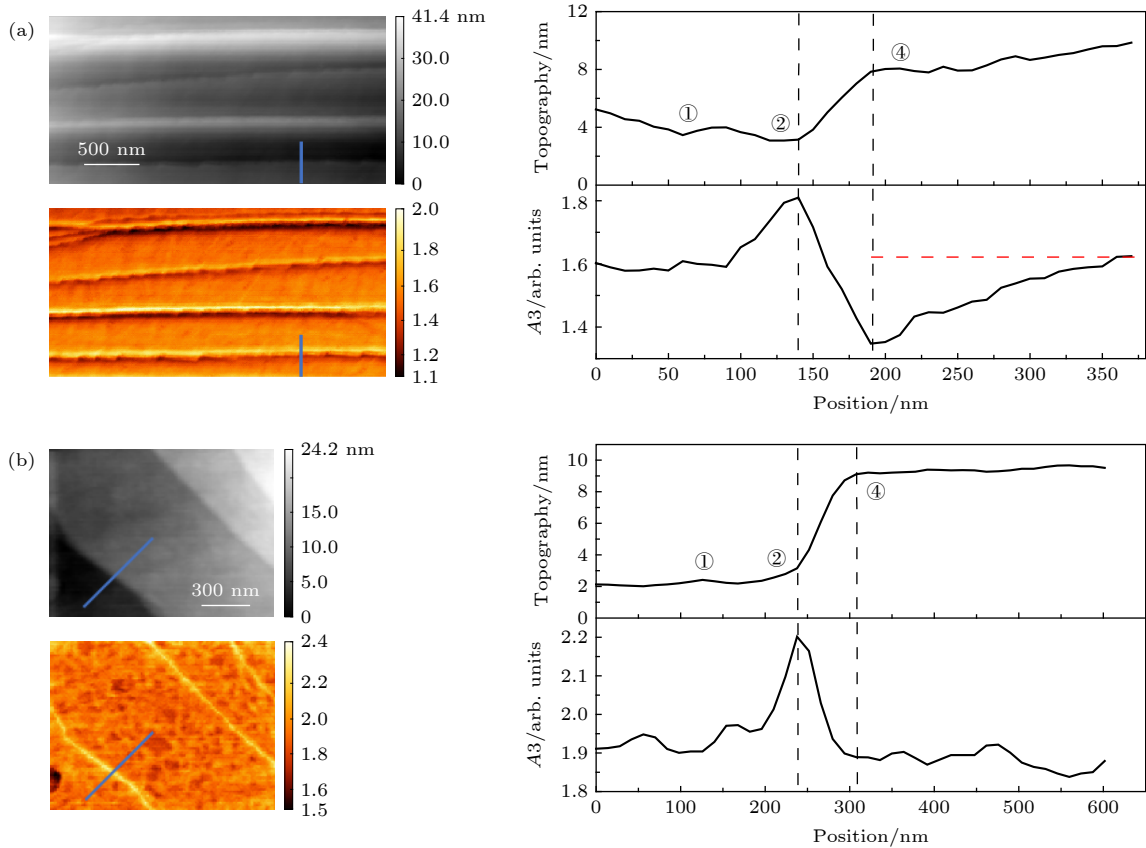


图 4 衬底台阶几何相近的两个石墨烯/铜样品的 s-SNOM 成像. 两种情况中, 左侧: 形貌 (上) 和 s-SNOM 成像 (下); 右侧: 左侧图中蓝色实线对应的形貌 (上) 和 s-SNOM 信号 (下) (a) 情况一, 台阶高度和宽度分别约为 5.3 nm 和 50 nm, 峰值和谷值分别对应台阶下方和下方边缘; (b) 情况二, 台阶高度和宽度分别约为 5.5 nm 和 55 nm, 仅出现一个对应于台阶下方边缘的峰值

Fig. 4. s-SNOM images of two graphene/Cu samples with similar surface step geometries. In both cases, left panel: topography (upper) and s-SNOM image (lower); right panel: line-profiles of topography (upper) and s-SNOM line-profiles (lower) corresponding to the blue solid lines in left panel. (a) Case 1 (peak-dip): step height of about 5.3 nm and width of about 50 nm. Signal peak and dip appear corresponding to the lower and upper edge of the step, respectively; (b) Case 2 (peak): step height of about 5.5 nm and width of about 55 nm. Only a signal peak appears corresponding to the lower edge of the step.

即针尖扫描到台阶下方边缘时, 在针尖正下方和样品之间以及针尖侧面和台阶之间形成两个热点, 增加了散射信号的强度, 从而出现峰值. 另一方面, 针尖侧面与台阶的耦合强度比针尖尖端与样品的耦合强度弱, 导致 h-BN 的散射信号变弱, 从而出现谷值. 而情况一中石墨烯谷值的成因可能与 h-BN 相同, 此情况下石墨烯 s-SNOM 信号谷值相对于 h-BN 的“空间延迟”现象可能是铜衬底在石墨烯中引入应力和掺杂、导致石墨烯光学电导率降低而引起的. 情况二中的 s-SNOM 信号没有谷值, 这可能是由于受到铜衬底影响, 台阶面上的石墨烯光学电导率很高, 导致针尖侧面与台阶面石墨烯的有效极化率较强, 于是没有出现 s-SNOM 信号的减弱. 以上的定性推测可以大体解释观测结果, 但是定量理解还需要进一步的详细实验研究和分析, 相关的工作正在开展, 将在未来的论文中报道.

4 总结

利用近场光学技术对高质量的石墨烯/铜和氮化硼/铜进行研究, 经过详尽分析铜衬底上台阶的近场光学信号, 发现石墨烯/铜和铜衬底具有非常不同的光学响应特征, 即石墨烯出现了响应信号的巨大空间延迟行为 (如图 4(a)), 其延迟宽度超过衬底台阶宽度的三倍. 另一方面还发现, 衬底几何结构相近的两个石墨烯样品呈现了完全不同的响应特征: 其中一个样品在台阶上、下边缘分别出现光学信号的谷值和峰值; 而另一个样品仅在台阶的下方边缘出现峰值, 在台阶上方边缘没有出现信号谷值 (图 4(b)). 以上两个发现都说明在石墨烯/铜中观测到了不能被铜表面台阶所解释的新现象, 由此可知这些结果来源于石墨烯的近场光学响应. 定性

讨论了可能由铜衬底引起的掺杂和应力对石墨烯近场响应的影响,并预期在不同的铜衬底上由于掺杂和应力的不同会导致石墨烯光学电导率的变化,进而直接影响其近场响应.以上结果都是在实验上观测到的,表明石墨烯/金属体系蕴含丰富的物理内涵.

综上所述,本文成功地在石墨烯/金属体系中观测到了石墨烯的近场光学响应信号,还观测到了两种截然不同的石墨烯响应行为;提供了一种从石墨烯/金属体系中提取石墨烯近场光学响应的新的研究思路,为深入研究石墨烯/金属体系中等离激元的行为提供了可能性,也为今后系统地研究石墨烯与金属相互作用产生的量子效应和多体效应奠定了重要基础.

参考文献

- [1] Basov D N, Fogler M M, de Abajo F J G 2016 *Science* **354** 6309
- [2] Chen X, Hu D, Mescall R, You G, Basov D N, Dai Q, Liu M 2019 *Adv. Mater.* **31** 1804774
- [3] Atkin J M, Berweger S, Jones A C, Raschke M B 2012 *Adv. Phys.* **61** 745
- [4] Low T, Avouris P 2014 *ACS Nano* **8** 1086
- [5] Duan J H, Chen J N 2019 *Acta Phys. Sin.* **68** 110701 (in Chinese) [段嘉华, 陈佳宁 2019 物理学报 **68** 110701]
- [6] Lundberg M B, Gao Y, Asgari R, Tan C, Duppen B V, Autore M, Alonso González P, Woessner A, Watanabe K, Taniguchi T, Hillenbrand R, Hone J, Polini M, Koppens F H L 2017 *Science* **357** 187
- [7] Principi A, Asgari R, Polini M 2011 *Solid State Commun.* **151** 1627
- [8] Principi A, Loon E v, Polini M, Katsnelson M I 2018 *Phys. Rev. B.* **98** 035427
- [9] Alkorre H, Shkerdin G, Stiens J, Vouckx R 2015 *J. Opt.* **17** 045003
- [10] Chen J, Badioli M, Alonso González P, Thongrattanasiri S, Huth F, Osmond J, Spasenović M, Centeno A, Pesquera A, Godignon P, Elorza A Z, Camara N, de Abajo F J G, Hillenbrand R, Koppens F H K 2012 *Nature* **487** 77
- [11] Fei Z, Rodin A S, Andreev G O, Bao W, McLeod A S, Wagner M, Zhang L M, Zhao Z, Thiemens M, Dominguez G, Fogler M M, Neto A H C, Lau C N, Keilmann F, Basov D N 2012 *Nature* **487** 82
- [12] Ni G X, Wang H, Wu J S, Fei Z, Goldflam M D, Keilmann F, Özyilmaz B, Neto A H C, Xie X M, Fogler M M, Basov D N 2015 *Nat. Mater.* **14** 1217
- [13] Dai S, Ma Q, Liu M K, Andersen T, Fei Z, Goldflam M D, Wagner M, Watanabe K, Taniguchi T, Thiemens M, Keilmann F, Janssen G C A M, Zhu S E, Jarillo Herrero P, Fogler M M, Basov D N 2015 *Nat. Nanotechnol.* **10** 682
- [14] Woessner A, Lundberg M B, Gao Y, Principi A, Alonso González P, Carrega M, Watanabe K, Taniguchi T, Vignale G, Polini M, Hone J, Hillenbrand R, Koppens F H L 2015 *Nat. Mater.* **14** 421
- [15] Yang X, Zhai F, Hu H, Hu D, Liu R, Zhang S, Sun M, Sun Z, Chen J, Dai Q 2016 *Adv. Mater.* **28** 2931
- [16] Jiang L, Shi Z, Zeng B, Wang S, Kang J H, Joshi T, Jin C, Ju L, Kim J, Lyu T, Shen Y R, Crommie M, Gao H J, Wang F 2016 *Nat. Mater.* **15** 840
- [17] Sunku S S, Ni G X, Jiang B Y, Yoo H, Sternbach A, McLeod A S, Stauber T, Xiong L, Taniguchi T, Watanabe K, Kim P, Fogler M M, Basov D N 2018 *Science* **362** 1153
- [18] Jiang B Y, Ni G X, Addison Z, Shi J K, Liu X, Zhao S Y F, Kim P, Mele E J, Basov D N, Fogler M M 2017 *Nano Lett.* **17** 7080
- [19] Jiang B Y, Zhang L M, Neto A H C, Basov D N, Fogler M M 2016 *J. Appl. Phys.* **119** 054305
- [20] Xu X, Zhang Z, Qiu L, Zhuang J, Zhang L, Wang H, Liao C, Song H, Qiao R, Gao P, Hu Z, Liao Z, Liao Z, Yu D, Wang E, Ding F, Peng H, Liu K 2016 *Nat. Nanotechnol.* **11** 930
- [21] Xu X, Zhang Z, Dong J, Yi D, Niu J, Wu M, Lin L, Yin R, Li M, Zhou J, Wang S, Sun J, Duan X, Gao P, Jiang Y, Wu X, Peng H, Ruoff R S, Liu Z, Yu D, Wang E, Ding F, Liu K 2017 *Sci. Bull.* **62** 1074
- [22] Liu C, Xu X, Qiu L, Wu M, Qiao R, Wang L, Wang J, Niu J, Liang J, Zhou X, Zhang Z, Peng M, Gao P, Wang W, Bai X, Ma D, Jiang Y, Wu X, Yu D, Wang E, Xiong J, Ding F, Liu K 2019 *Nature Chem.* **11** 730
- [23] Wang L, Xu X, Zhang L, Qiao R, Wu M, Wang Z, Zhang S, Liang J, Zhang Z, Zhang Z, Chen W, Xie X, Zong J, Shan Y, Guo Y, Willinger M, Wu H, Li Q, Wang W, Gao P, Wu S, Zhang Y, Jiang Y, Yu D, Wang E, Bai X, Wang Z J, Ding F, Liu K 2019 *Nature* **570** 91
- [24] Babicheva V E, Gamage S, Stockman M I, Abate Y 2017 *Opt. Express* **25** 23935
- [25] Abate Y, Gamage S, Li Z, Babicheva V, Javani M H, Wang H, Cronin S B, Stockman M I 2016 *Light Sci. Appl.* **5** e16162
- [26] Costa S D, Weis J E, Frank O, Kalbac M 2015 *Carbon.* **93** 793
- [27] Frank O, Vejpravova J, Holy V, Kavan L, Kalbac M 2014 *Carbon.* **68** 440
- [28] Walter A L, Nie S, Bostwick A, Kim K S, Moreschini L, Chang Y J, Innocenti D, Horn K, McCarty K F, Rotenberg E 2011 *Phys. Rev. B.* **84** 195443
- [29] Lyu B, Li H, Jiang L, Shan W, Hu C, Deng A, Ying Z, Wang L, Zhang Y, Bechtel H A, Martin M C, Taniguchi T, Watanabe K, Luo W, Wang F, Shi Z 2019 *Nano Lett.* **19** 1982

Near-field infrared microscopy of graphene on metal substrate*

Cen Gui¹⁾ Zhang Zhi-Bin²⁾ Lü Xin-Yu¹⁾ Liu Kai-Hui²⁾ Li Zhi-Qiang^{1)†}¹⁾ (*College of Physics, Sichuan University, Chengdu 610065, China*)²⁾ (*School of Physics, Peking University, Beijing 100871, China*)

(Received 9 October 2019; revised manuscript received 8 November 2019)

Abstract

Graphene plasmons, collective oscillation modes of electrons in graphene, have recently attracted intense attention in both the fundamental researches and the applications because of their strong field confinement, low loss and excellent tunability. The dispersion of graphene plasmons can be significantly modified in the system of graphene on metal substrate, in which the screening of the long-range part of the electron-electron interactions by nearby metal can lead to many novel quantum effects, such as acoustic plasmons, quantum nonlocal effects and renormalization of band structure. Scattering-type scanning near-field optical microscopy (s-SNOM) which consists of a laser coupled to the tip of an atomic force microscopy (AFM), is an effective technique to directly probe plasmons in two-dimensional materials including graphene, and the graphene plasmons can be observed visually by real-space imaging. But so far the detailed s-SNOM studies of graphene/metal system have not been reported. One potential challenge is that the near-field response of highly conductive metal substrate may partially or entirely obscure that of graphene, making it difficult to further explore graphene by using s-SNOM. Here in this paper, we report the direct observation of near-field optical response of graphene in a graphene/metal system excited by a mid-infrared quantum cascade laser. From a close examination of the data of graphene/Cu compared with that of h-BN/Cu, we are able to identify experimental features due to the near-field response of graphene. Surprisingly, two completely different behaviors are observed in the s-SNOM data for different graphene samples on Cu substrates with similar surface step geometries. These results suggest that the near-field response of graphene/metal system is not completely dominated by the metal substrate, and that two completely different near-field response behaviors of graphene may be attributed to their intrinsic properties affected by metal substrates themselves rather than surface step geometries of metal substrate. In addition, following this approach it is possible to distinguish the near-field optical responses of graphene from that of graphene/metal system. Our work reveals the clear signatures of the near-field optical response of graphene on metal substrate, which provides the foundation for probing plasmons in these systems by using the s-SNOM and understanding many novel quantum phenomena therein.

Keywords: graphene, metal substrate, near-field optics**PACS:** 78.67.Wj, 07.79.Fc**DOI:** [10.7498/aps.69.20191598](https://doi.org/10.7498/aps.69.20191598)

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11874271).

† Corresponding author. E-mail: zhiqiangli@scu.edu.cn