

文章编号:1004-5929(2016)01-0016-07

## 转角多层石墨烯层间耦合的共振拉曼光谱研究

吴江滨<sup>1</sup>, 张昕<sup>1</sup>, 韩文鹏<sup>1</sup>, 乔晓粉<sup>1</sup>, M. Ijäs<sup>2</sup>, A. C. Ferrari<sup>2</sup>, 谭平恒<sup>1\*</sup>

(1. 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;

2. CGC, University of Cambridge, 9 JJ Thomson Avenue, Cambridge CB3 0FA, UK)

**摘要:**我们通过共振拉曼光谱测量了转角多层石墨烯的层间振动模式:剪切模和呼吸模。根据改进的线性模型,我们发现在转角多层石墨烯界面处的层间呼吸耦合与正常 Bernal 堆垛多层石墨烯的强度相当。此结果明显不同于层间剪切耦合,后者在转角多层石墨烯界面处的层间剪切耦合减弱到了正常 Bernal 堆垛多层石墨烯的 20%。另外,我们首次发现层间呼吸耦合存在着次近邻原子层之间的相互作用,其强度为最近邻的 9%。我们发现当采用与界面层间旋转角度相对应的激发光时,转角多层石墨烯的拉曼信号得到极大的增强。为此,我们引入光学跃迁允许的电子联合态密度的概念,通过理论计算,我们发现这种联合态密度的极大值决定了拉曼信号共振线型的激发光能量极值。本研究表明,层间振动模式是探测二维层状异质层间耦合的有效手段,为其在器件应用方面的研究奠定了基础。

**关键词:**石墨烯;层间剪切模;层间呼吸模;二维异质结;拉曼光谱

中图分类号:O433.4

文献标志码:A

doi:10.13883/j.issn1004-5929.201601005

## Interface Coupling in Twisted Multilayer Graphene by Resonant Raman Spectroscopy

WU Jiang-bin<sup>1</sup>, ZHANG Xin<sup>1</sup>, HAN Wen-peng<sup>1</sup>, QIAO Xiao-fen<sup>1</sup>, M. Ijäs<sup>2</sup>,  
A. C. Ferrari<sup>2</sup>, TAN Ping-heng<sup>1\*</sup>

(1. State Key Laboratory of Superlattices and Microstructures, Institute of Semiconductors, Chinese Academy of Sciences, Beijing, 100083, P. R. China; 2. CGC, University of Cambridge, 9 JJ Thomson Avenue, Cambridge CB3 0FA, UK)

**Abstract:** The C and LB modes of  $t(m+n)$ LG are studied systematically by Raman spectroscopy. In the  $t(m+n)$ LG, the C modes of  $n$ LG and  $m$ LG and LBMs of  $(m+n)$ LG are observed. We fit the positions of C and LB modes by an improved linear chain model. We find the interlayer shear coupling at the twisted interface is  $\sim 20\%$  of that at Bernal stacked interfaces, but the layer breathing coupling at the twisted interface is closed to that of Bernal interface. Moreover, the next-nearest interlayer interaction, which is 9% of the nearest interlayer interaction, must be considered for LBMs. The Raman intensity of the C, LB and G modes is significantly enhanced in  $t(m+n)$ LGs for specific excitation energies. This behavior is assigned to the resonance between van Hove singularities in the joint density of states of all optically allowed transitions in twisted multilayer samples and the laser excitation energy, during the optical absorption and emission steps of the Raman process. Beyond tMLGs, the interlayer interaction of other heterostructures can also be measured by Raman spectroscopy.

**Key words:** graphene; shear mode; layer breathing mode; 2D heterostructure; Raman spectroscopy

收稿日期:2015-07-11; 修改稿日期:2015-09-20

基金项目:国家自然科学基金(11225421, 11474277, 11434010)

作者简介:吴江滨(1990-),男,福建泉州,博士研究生,研究方向为二维层状材料光学性质, E-mail: jbwu@semi.ac.cn

通讯作者:谭平恒, E-mail: phtan@semi.ac.cn

## 1 引言

以石墨烯为代表的二维材料具有优良的电学性能和光学性能,因此被期待用来发展更薄、导电速度更快的新一代电子元件,晶体管和光电器件<sup>[1-3]</sup>。将石墨烯堆叠起来可以得到多层石墨烯<sup>[4]</sup>。除了具有和体石墨相同的 Bernal 堆垛(即 AB 堆垛)方式的多层石墨烯之外<sup>[5]</sup>,还可以在实验室制备或者合成出不同石墨烯片层取向随机的多层石墨烯,即转角多层石墨烯<sup>[6-9]</sup>。转角多层石墨烯内各子系统的层数不同和各子系统间旋转角度的不同将使得其具有无限多的可能性,这无疑大大丰富了石墨烯材料的研究对象和研究内容:例如单层或多层石墨烯堆垛方式的差异有可能导致石墨烯片层不同的层间耦合,从而影响其电子能带结构,使得转角多层石墨烯具有与其堆垛方式相应的各种各样的光电性质<sup>[10-15]</sup>。因此,探测和理解这种层间耦合就变得至关重要。

二维层状材料的层间剪切模(C模)和层间呼吸模(LBM)直接反映了层间耦合的性质<sup>[16-17]</sup>。对于一个 N 层的层状二维材料,存在 N-1 个的 C 模和 LBM 模,我们将其记为  $C_{NN-i}$  和  $LBM_{NN-i}$  ( $i=1,2,\dots,N-1$ ),其中  $C_{N1}$  和  $LBM_{N1}$  表示频率最高的模式<sup>[8-9,18]</sup>。多层石墨烯的 C 模已经被成功地观测到,并且可以用来探测狄拉克点(Dirac point)附近能量为几个 meV 的电子激发<sup>[19]</sup>。到目前为止,因为对称性和相对弱的电声子耦合等原因,多层石墨烯的 LBM 在常温下还未能被观察到<sup>[20]</sup>。

在这里,我们将层数为  $n$  的 AB 堆垛的石墨烯( $n$ LG,  $n \geq 1$ )和层数为  $m$  的 AB 堆垛的石墨烯( $m$ LG,  $m \geq 1$ )以一定的角度  $\theta$  堆垛到一起,形成  $m+n$  层的转角多层石墨烯( $t(m+n)$ LG)。通过选择与旋转角度相对应的激发光,系统地探测了  $t(m+n)$ LG 的 C 模和 LBM。我们发现在  $t(m+n)$ LG 中探测到了来自  $n$ LG 和  $m$ LG 的 C 模和来自  $t(m+n)$ LG 的 LBM。通过改进的线性原子链模型<sup>[21]</sup>(LCM)拟合发现转角界面处的剪切耦合为 AB 堆垛界面处的 20%,而呼吸耦合并没有明显的变化。此外,我们发现存在着次近邻原子层的呼吸耦合,其强度为最近邻原子层耦合的 9%。最后,我们提出了“光学跃迁允许的联合态密度(JDOS<sub>OAT</sub>)”的概念,很好地解释了在  $t(m+n)$ LG 中拉曼信号的共振增强现象。

## 2 实验装置

本文所用的  $t(m+n)$ LG 是通过机械剥离法或者转移法制备的。同时利用光学衬度方法<sup>[22-24]</sup>(optical contrast)和原子力显微镜(atomic force microscopy)确定了样品层数。所涉及到的拉曼光谱测试是采用法国 Horiba Jobin Yvon 公司的 LabRam HR800 共焦显微拉曼光谱仪。所使用的能量为 1.58 和 1.71 eV 的激光是来自钛宝石激光器,能量为 1.96, 2.03, 2.09 和 2.28 eV 的激光是来自 He-Ne 激光器,能量为 1.83, 1.92, 2.18, 2.34 和 2.41 eV 的激光是来自  $Kr^+$  激光器,以及能量为 2.54 和 2.67 eV 的激光是来自  $Ar^+$  激光器。为防止出现样品的加热效应,测试拉曼光谱所用的激光功率低于 0.5 mW。为了探测超低频率的拉曼信号,我们采用了四块光密度(optical density)为 3,光谱带宽(spectral bandwidth)为 5~10  $cm^{-1}$  的布拉格光栅(BragGrate notch filters)去除瑞利线(Rayleigh line)。当激发光能量为 2.41 eV 时光谱分辨率为 0.54  $cm^{-1}$ 。转角多层石墨烯的能带结构是由 DFTB+ 软件包<sup>[25-27]</sup>计算的。另外,我们采用紧束缚方法计算了光学跃迁矩阵元<sup>[28-29]</sup>。

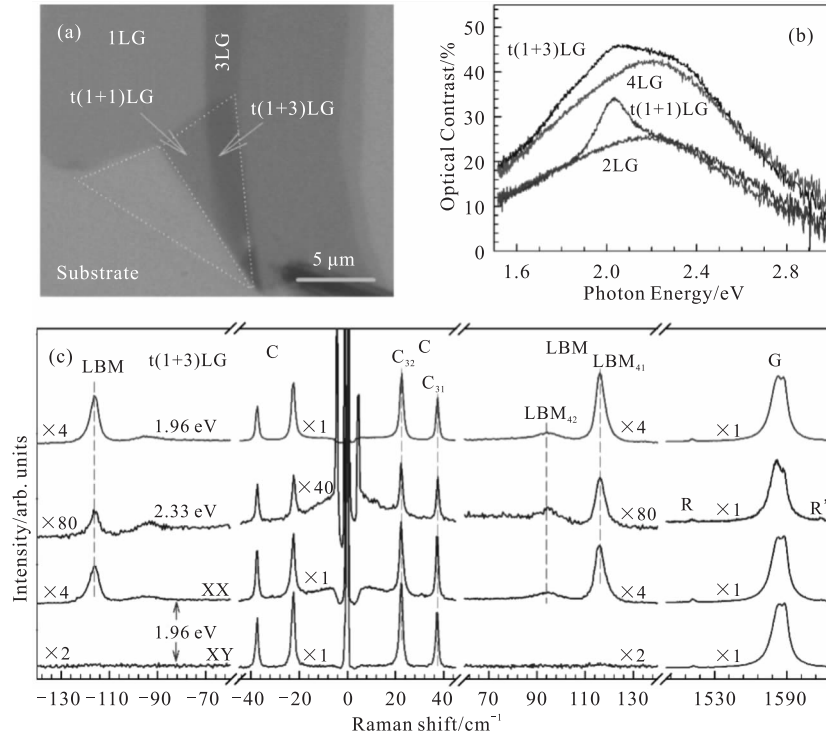
## 3 结果与讨论

图 1a 为  $t(1+1)$ LG 和  $t(1+3)$ LG 的光学图像,图 1b 展示了它们的光学衬度谱。与  $(m+n)$ LG 相比,  $t(m+n)$ LG 的光学衬度谱多出了一个吸收峰。这个吸收峰来自于界面层间旋转导致的能带结构变化,这点将在后文进行详细地讨论。图 1c 画出了  $t(1+3)$ LG 的拉曼光谱。在 G 模两侧存在着两个相对较弱的模式,通常称其为 R ( $1510\text{ cm}^{-1}$ )和 R' ( $1618\text{ cm}^{-1}$ )模。这两个模式是来自于上下两层石墨烯旋转之后产生的超晶格<sup>[30]</sup>。根据这两个模式的频率我们可以定出这个  $t(1+3)$ LG 界面处层间旋转角  $\theta$  为  $10.6^\circ$ 。在 37 和 22  $cm^{-1}$  处,我们观察到了两个 C 模,根据它们的频率,我们将其分别指认为  $C_{31}$  和  $C_{32}$ 。同时在 93 和 116  $cm^{-1}$  处,我们也观察到了两个相对较宽的模式。根据第一性原理计算的结果<sup>[31]</sup>,这两个模式可以被指认为  $LBM_{42}$  和  $LBM_{41}$ 。另外,通过对称性分析发现,  $t(m+n)$ LG ( $m \neq n$ )具有  $C_3$  对称性,其对应的 C 模和 LBM 的拉曼张量如下<sup>[32]</sup>:

$$E(C \text{ 模}): \begin{bmatrix} 0 & d & 0 \\ d & 0 & e \\ 0 & f & 0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} d & 0 & -e \\ 0 & -d & 0 \\ -f & 0 & 0 \end{bmatrix}$$

$$A(LBM): \begin{bmatrix} a & 0 & 0 \\ 0 & a & 0 \\ 0 & 0 & b \end{bmatrix}$$

根据上述的拉曼张量, LBM 在 XX 偏振配置下可以被观察到, 而在 XY 偏振下看不到, 但是 C 模在两种偏振下都可以被看到, 而且强度相同。我们在图 1c 中画出了 t(1+3)LG 的偏振拉曼实验结果, 与对称性分析的结论吻合, 进一步证实了我们的指认。



**Fig. 1** (a) Optical image of a flake comprising a t(1+1)LG and a t(1+3)LG. (b) Optical contrast of t(1+1)LG and t(1+3)LG. For comparison, the contrast of 2LG and 4LG is also plotted. (c) Stokes/anti-Stokes Raman spectra in the C and LB spectral range, and Stokes Raman spectra in the G peak region for 1.96 and 2.33 eV excitation. Polarized Raman spectra are also shown

图 2 给出了 t(1+2)LG, t(1+1+1)LG, t(1+3)LG, t(2+2)LG, t(2+3)LG 和 t(5+5)LG 的拉曼光谱。它们的旋转角度与对应的激发光能量都被标注出来。我们在 t(1+2)LG 中观察到了  $C_{21}$  ( $31 \text{ cm}^{-1}$ ) 模和  $LBM_{31}$  ( $109 \text{ cm}^{-1}$ ), 而在 t(2+2)LG 中观察到  $C_{21}$  ( $31 \text{ cm}^{-1}$ ) 模和  $LBM_{41}$  ( $109 \text{ cm}^{-1}$ ), 在其他的 t(m+n)LG 中也观察到了类似的情况。也就是, 我们在 t(m+n)LG 中观察了分别来自于 nLG 和 mLG 的 C 模和来自 (m+n)LG 的 LBM。在 t(m+n)LG 中, 转角的界面阻隔了层间的剪切耦合, 使得 C 模局限在 AB 堆垛的子系统内。而这种阻隔对呼吸耦合并不起作用, 因此 LBM 模仍为 (m+n)LG 的模式。

一般地, 多层石墨烯等二维层状材料的 C 模

和 LBM 的频率以及原子位移方式可以通过求解如下的线性齐次方程组得到<sup>[8]</sup>:

$$\omega_i^2 u_i = \frac{1}{2\pi^2 c^2 \mu} D u_i$$

其中  $u_i$  是第 i 个模式振动频率为  $\omega_i$  的声子的特征向量(振动方式),  $\mu = 7.6 \times 10^{-27} \text{ kg} \text{ \AA}^{-2}$  是单层石墨烯单位面积质量,  $c = 3.0 \times 10^{10} \text{ cm s}^{-1}$  为光速, D 为力常数矩阵。在多层石墨烯中, 其界面皆为 AB 堆垛, 因此假设每一个层间力常数都相同, 为  $\alpha_0$ , 这样得到的模型为线性原子链模型(LCM)。对于多层石墨烯的 C 模,  $\alpha_0'' = 12.8 \times 10^{18} \text{ Nm}^{-3}$ 。而对于 t(m+n)LG 的 C 模, 我们对 LCM 进行了改进, 假设转角界面处的剪切耦合为  $\alpha_i''$ , 并且与转角界面相邻的界面的剪切耦合为  $\alpha_0''$ , 如图 3a

所示,称之为 tLCM。通过与实验结果进行拟合,我们发现  $\alpha'_i / \alpha'_0$  的平均值为 20%,  $\alpha''_i / \alpha''_0$  的平均值为 90%,所计算的结果和实验结果吻合很好,如图 3b 所示。而对于  $t(m+n)$ LG 的 LBM,因为转角界面对呼吸耦合的影响很小,如果假设层间最近邻原子层只存在最近邻呼吸耦合,  $\alpha_0^\perp$ , 我们发现该计算结果与  $LBM_{N2}$  这一模式的频率相差较大,达到  $2 \sim 4 \text{ cm}^{-1}$ 。因此,我们同时引入层间次近邻原子层的呼吸耦合,设为  $\beta_0^\perp$ , 如图 3a 所

示,称之为 2LCM。通过与实验结果进行拟合,我们得到  $\alpha_0^\perp = 106 \times 10^{18} \text{ Nm}^{-3}$ ,  $\beta_0^\perp = 9.3 \times 10^{13} \text{ Nm}^{-3}$ , 通过该数值计算的结果和实验的结果吻合很好,如图 3b 所示。我们将 2LCM 推广到体石墨材料,得到体石墨呼吸模频率为  $125.3 \text{ cm}^{-1}$ ,与第一性原理计算结果( $128 \text{ cm}^{-1}$ )一致<sup>[31]</sup>。因此  $t(m+n)$ LG 中 C 模和 LBM 之所以表现出不同行为,是因为转角多层石墨烯界面处的剪切耦合仅为 AB 堆垛的 20%,而呼吸耦合并没有明显的变化。

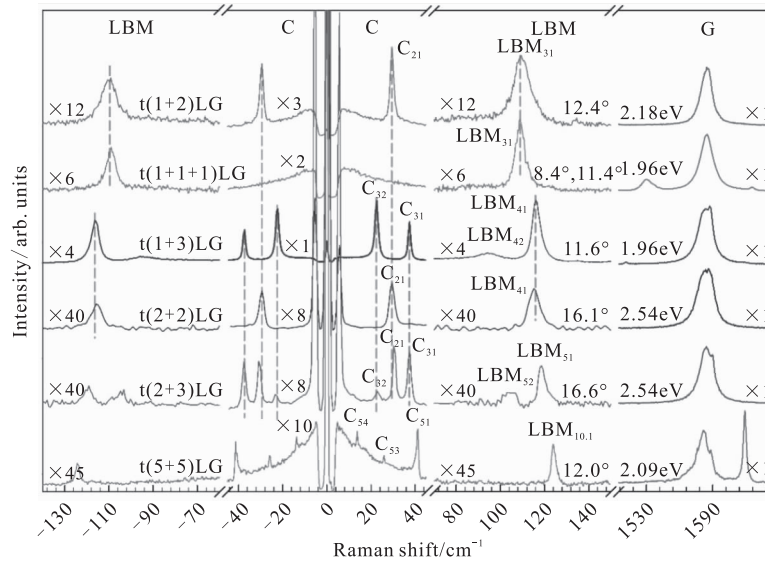


Fig. 2 Stokes/anti-Stokes Raman spectra in the C and LB peak region and Stokes spectra in the G spectral region for six tMLGs,  $E_{ex}$  is also indicated. The spectra are scaled and offset for clarity. The scaling factors of the individual spectra are shown. Vertical lines are guides to the eye

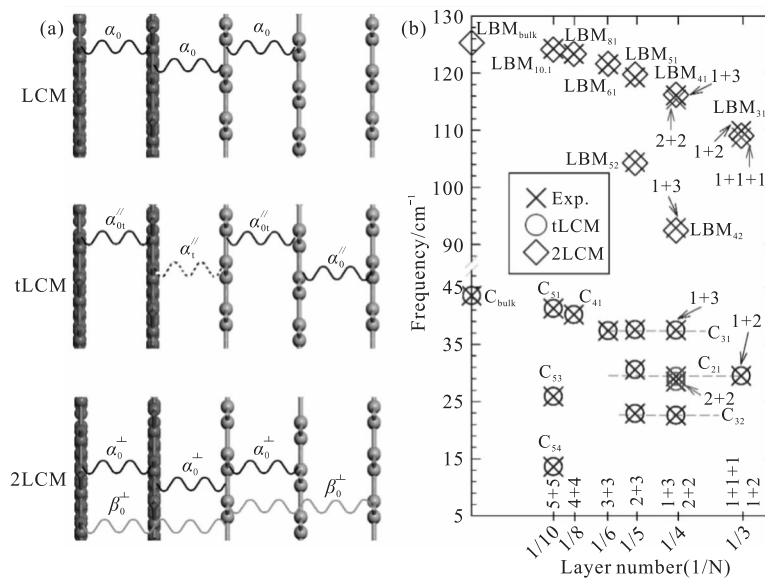


Fig. 3 (a) Linear chain model (LCM), LCM with the twisted interface (tLCM) and LCM with second-nearest interlayer coupling (2LCM). (b) Experimental (Exp., open crosses) and theoretical (tLCM, open circles, and 2LCM, open diamonds) data of C and LB modes in tNLG

在图 1c 中,我们发现当激发光为 1.96 eV 时,  $t(1+3)$  LG 的拉曼信号得到极大增强,是激发光为 2.33 eV 时的拉曼强度的 30 倍左右。由此可见,在  $t(m+n)$  LG 中,存在着拉曼信号增强现象。共振拉曼信号的增强现象可以用二阶微扰理论来解释。因为只有光学跃迁允许的能带才能在拉曼过程中有贡献,在这里我们引入光学跃迁允许的联合态密度<sup>[8]</sup>:

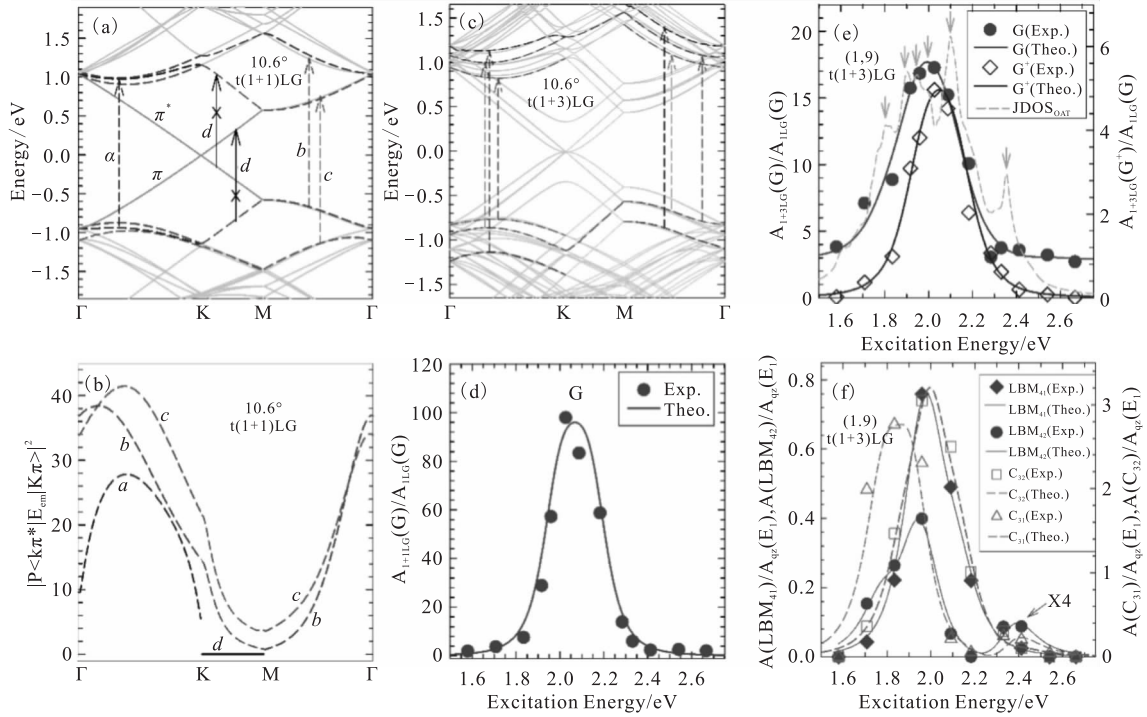
$$JDOS_{OTA}(E) \propto \sum_{ij} \sum_k |M_{ij}(k)|^2 \delta(E_{ij}(k) - E)$$

其中,  $M_{ij}(k)$  是第  $i$  条价带到第  $j$  条导带的光学跃迁矩阵元,  $E_{ij}(k)$  则是在波矢为  $k$  处对应的跃迁能量。图 4a 画出了在转角为  $10.6^\circ$  的  $t(1+1)$  LG 的能带结构,以及其中若干允许的光学跃迁。而图 4b 给出了对应允许跃迁的矩阵元。同样的,图 4c 画出了相同转角的  $t(1+3)$  LG 的能带结构,以及其中若干允许的光学跃迁。利用上述的能带结构和光学跃迁矩阵元,我们可以计算出对应的

光学跃迁允许的联合态密度  $JDOS_{OAT}$ 。  $JDOS_{OAT}$  中范霍夫奇点(VHS)的能量就对应着拉曼信号可能增强的能量。所以,  $t(m+n)$  LG 的拉曼信号强度随激发光能量  $E_{ex}$  的变化根据  $JDOS_{OAT}$  的计算结果可以简化为<sup>[8,28]</sup>:

$$A \propto \left| \sum_j \frac{M_j}{(E_{ex} - E_{VHS}(j) - i\gamma)(E_{ex} - E_{ph} - E_{VHS}(j) - i\gamma)} \right|^2$$

其中,  $M_j$  为拟合常数,与  $JDOS_{OAT}$  中第  $j$  个范霍夫奇点总的电子-声子和电子-光子相互作用有关,  $E_{ph}$  为声子能量(G 模为 0.196 eV, C 模为 2~5 meV, LBM 模为 10~15 meV),  $\gamma$  是一个与激发态寿命相关的能量,这里取 0.15 eV。图 4c-f 给出了计算的 G 模, C 模和 LBM 模的强度随激发光的变化,都和实验的结果符合的很好。我们注意到每个模式随着激发光能量变化的行为是不一样的,那是因为不同的声子模式与每一条带的电声子耦合强度是不一样的。



**Fig. 4** (a) Band structure of  $10.6^\circ$   $t(1+1)$  LG. The optically allowed transitions are marked by dashed arrows. The transitions with energy  $\sim 1.15$  eV between parallel bands along K-M are forbidden, as indicated by solid arrows with crosses. (b) Squared optical matrix elements of the corresponding band pairs in (a). (c) Band structure of  $10.6^\circ$   $t(1+3)$  LG. Some typical transitions are indicated by vertical dashed lines. (d)  $A(G)$  of  $t(1+1)$  LG, (e)  $A(G)$  and  $A(G^+)$  of  $t(1+3)$  LG, and (f)  $A(C_{31})$ ,  $A(C_{32})$ ,  $A(LBM_{42})$  and  $A(LBM_{41})$  as a function of laser excitation energy. The filled circles, open diamonds, open triangles and open squares are the experimental data, while the lines show the simulations. The dash-dotted lines in (e) are the electronic joint density of states (JDOSs) of all the optically allowed transitions ( $JDOS_{OAT}$ ) in  $t(1+3)$  LG along G-K-M-G. The VHSs of  $JDOS_{OAT}$  are indicated with arrows

#### 4 结论

在本文中,我们通过机械剥离和转移方法制备了不同层数的  $t(m+n)$ LG。利用共振拉曼手段,系统地探测了  $t(m+n)$ LG 的 C 模和 LBM。在  $t(m+n)$ LG 中,我们发现 C 模是局域在  $n$ LG 和  $m$ LG 子系统内的,而 LBM 是全局的。通过改进的线性原子链模型(LCM)拟合实验结果,我们发现转角界面处的剪切耦合为 AB 堆垛界面处的 20%,而呼吸耦合并没有明显的变化。此外,我们还发现多层石墨烯存在着次近邻呼吸耦合,其强度为最近邻呼吸耦合的 9%。最后,我们利用“光学跃迁允许的联合态密度(JDOS<sub>OAT</sub>)”的概念,很好地解释了在  $t(m+n)$ LG 中拉曼信号的共振增强现象。本文的研究表明,层间振动模式是探测二维层状异质层间耦合的有效手段,为其在器件应用方面的研究奠定了基础。

#### 参考文献

- [1] 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.
- [2] Geim A K, Novoselov K S. The rise of graphene [J]. *Nature Materials*, 2007, 6(3): 183-191.
- [3] Geim A K. Graphene: Status and Prospects [J]. *Science*, 2009, 324(5934): 1530-1534.
- [4] Ohta T, Bostwick A, McChesney J L, *et al.* Interlayer interaction and electronic screening in multilayer graphene investigated with angle-resolved photoemission spectroscopy [J]. *Phys Rev Lett*, 2007, 98(20): 206802.
- [5] Bernal J. The structure of graphite [J]. *Proc R Soc Lond A*, 1924, 104: 749-773.
- [6] Suarez Morell E, Pacheco M, Chico L, *et al.* Electronic properties of twisted trilayer graphene [J]. *Phys Rev B*, 2013, 87: 125414.
- [7] Tan P H, Wu J B, Han W P, *et al.* Ultralow-frequency shear modes of 2-4 layer graphene observed in scroll structures at edges [J]. *Phys Rev B*, 2014, 89: 235404.
- [8] Wu J B, Zhang X, Ijäs M, *et al.* Resonant Raman Spectroscopy of Twisted Multilayer Graphene [J]. *Nat Commun*, 2014, 5: 5309.
- [9] Wu J B, Hu Z X, Tan P H, *et al.* Interface Coupling in Twisted Multilayer Graphene by Resonant Raman Spectroscopy of Layer Breathing Modes [J]. *ACS Nano ASAP* 2015.
- [10] Dos Santos J L, Peres N, Neto A C. Graphene bilayer with a twist: electronic structure [J]. *Phys Rev Lett*, 2007, 99: 256802.
- [11] Trambly de Laissardiere G, Mayou D, Magaud L. Localization of Dirac electrons in rotated graphene bilayers [J]. *Nano Lett*, 2010, 10: 804-808.
- [12] Moon P, Koshino M. Optical absorption in twisted bilayer graphene [J]. *Phys Rev B*, 2013, 87: 205404.
- [13] Li G, Luican A, Dos Santos J M B L, *et al.* Observation of Van Hove singularities in twisted graphene layers [J]. *Nat Phys*, 2010, 6(2): 109-113.
- [14] Kim K, Coh S, Tan L Z, *et al.* Raman spectroscopy study of rotated double-layer graphene: misorientation-angle dependence of electronic structure [J]. *Phys Rev Lett*, 2012, 108(24): 246103.
- [15] Havener R W, Zhuang H, Brown L, *et al.* Angle-resolved Raman imaging of interlayer rotations and interactions in twisted bilayer graphene [J]. *Nano Lett*, 2012, 12(6): 3162-3167.
- [16] Zhang X, Han W P, Wu J B, *et al.* Raman spectroscopy of shear and layer breathing modes in multilayer MoS<sub>2</sub> [J]. *Phys Rev B*, 2013, 87(11): 115413.
- [17] Michel K H, Verberck B. Theory of rigid-plane phonon modes in layered crystals [J]. *Phys Rev B*, 2012, 85(9): 094303.
- [18] Cong C, Yu T. Enhanced ultra-low-frequency interlayer shear modes in folded graphene layers [J]. *Nat Commun*, 2014, 5: 4709.
- [19] Tan P H, Han W P, Zhao W J, *et al.* The shear mode of multilayer graphene [J]. *Nat Mater*, 2012, 11(4): 294-300.
- [20] Lui C H, Ye Z, Keiser C, *et al.* Temperature-activated layer-breathing vibrations in few-layer graphene [J]. *Nano Letters*, 2014, 14(8): 4615-4621.
- [21] 张光寅, 蓝国祥, 王玉芳. 晶格振动光谱学(第 2 版) [M]. 北京: 高等教育出版社, 2001: 73-83. (Zhang guangyin, Lan guoxiang, Wang yufang. Lattice vibration spectroscopy(2ed) [M]. Beijing: Higher Education Press, 2001: 73-83)
- [22] Blake P, Hill E W, Neto A H C, *et al.* Making graphene visible [J]. *Applied Physics Letters*, 2007, 91(6): 063124.
- [23] Ni Z H, Wang H M, Kasim J, *et al.* Graphene Thickness Determination Using Reflection and Contrast Spectroscopy [J]. *Nano Letters*, 2007, 7(9): 2758-2763.
- [24] 韩文鹏, 史衍猛, 李晓莉, 等. 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 [J]. *物理*

- 学报, 2013, 62(11):110702. (Han W P, Shi Y M, Li X Li, *et al.* The numerical-aperture-dependent optical contrast and thickness determination of ultrathin flakes of two-dimensional atomic crystals; A case of graphene multilayers [J], *Acta Phys. Sin.*, 2013, 62(11):110702.)
- [25] Aradi B, Hourahine B, Frauenheim T. DFTB+, a sparse matrix-based implementation of the DFTB method [J]. *J Phys Chem A*, 2007, 111(26):5678-5684.
- [26] Hourahine B, Sanna S, Aradi B, *et al.* Self-interaction and strong correlation in DFTB [J]. *J Phys Chem A*, 2007, 111(26):5671-5677.
- [27] 吴江滨, 张昕, 谭平恒, 等. 旋转双层石墨烯的电子结构 [J]. *物理学报*, 2013, 62(15):157302. (Wu J B, Zhang X, Tan P H, *et al.* Electronic structure of twisted bilayer graphene [J], *Acta Phys Sin.*, 2013, 62(15):157302.)
- [28] Venezuela P, Lazzeri M, Mauri F. Theory of double-resonant Raman spectra in graphene: Intensity and line shape of defect-induced and two-phonon bands [J]. *Phys Rev B*, 2011, 84(3):035433.
- [29] Coh S, Tan L Z, Louie S G, *et al.* Theory of the Raman spectrum of rotated double-layer graphene [J]. *Phys Rev B*, 2013, 88(16):165431.
- [30] Coh S, Tan L Z, Louie S G, *et al.* Theory of the Raman spectrum of rotated double-layer graphene [J]. *Phys Rev B*, 2013, 88(16):165431.
- [31] Dolling G, Brockhouse B N. Lattice vibrations in pyrolytic graphite [J]. *Phys Rev*, 1962, 128(3):1120.
- [32] London R. The Raman effect in crystals [J]. *Adv Phys*, 2001, 50(7):813-864.