



转角双层-双层石墨烯中同位旋极化的 $C = 4$ 陈绝缘态

刘义俊 陈以威 朱雨剑 黄焱 安冬冬 李庆鑫 甘祺康 朱旺 宋珺威 王开元 魏凌楠 宗其军 刘硕涵 李世伟
刘芝 张琪 徐瑛海 曹新宇 杨奥 王浩林 杨冰 Andy Shen 于葛亮 王雷

Isospin polarized Chern insulator state of $C = 4$ in twisted double bilayer graphene

Liu Yi-Jun Chen Yi-Wei Zhu Yu-Jian Huang Yan An Dong-Dong Li Qing-Xin Gan Qi-Kang Zhu
Wang Song Jun-Wei Wang Kai-Yuan Wei Ling-Nan Zong Qi-Jun Liu Shuo-Han Li Shi-Wei Liu
Zhi Zhang Qi Xu Ying-Hai Cao Xin-Yu Yang Ao Wang Hao-Lin Yang Bing Andy Shen Yu Ge-
Liang Wang Lei

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 72, 147303 (2023) DOI: 10.7498/aps.72.20230497

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.72.20230497>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

转角双层石墨烯在应变下的光电导率

Optical conductivity of twisted bilayer graphene under heterostrain

物理学报. 2021, 70(18): 187301 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210110>

反旋双色椭圆偏场中Ar非次序双电离电子关联的强度依赖

Intensity-dependent electron correlation in nonsequential double ionization of Ar atoms in counter-rotating two-color elliptically polarized laser fields

物理学报. 2022, 71(19): 193201 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20221044>

基于多组态含时Hartree-Fock方法研究电子关联对于H₂分子强场电离的影响

Multiconfiguration time-dependent Hartree-Fock treatment of electron correlation in strong-field ionization of H₂ molecules

物理学报. 2018, 67(10): 103301 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20172701>

转角石墨烯体系的拓扑特性和轨道磁性

Topological properties and orbital magnetism in twisted graphene systems

物理学报. 2020, 69(14): 147301 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200506>

扭转双层石墨烯物理性质、制备方法及其应用的研究进展

Review of fabrication methods, physical properties, and applications of twisted bilayer graphene

物理学报. 2018, 67(24): 246802 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20181432>

强场非次序双电离中再碰撞动力学的强度依赖

Intensity-dependent recollision dynamics in strong-field nonsequential double ionization

物理学报. 2019, 68(3): 033201 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20181811>

专题: 二维转角莫尔超晶格 • 封面文章

转角双层-双层石墨烯中同位旋极化的 $C = 4$ 陈绝缘态*

刘义俊¹⁾²⁾ 陈以威¹⁾²⁾ 朱雨剑¹⁾²⁾ 黄焱¹⁾²⁾ 安冬冬¹⁾²⁾ 李庆鑫¹⁾²⁾
甘祺康¹⁾²⁾ 朱旺¹⁾²⁾ 宋珺威¹⁾²⁾ 王开元¹⁾²⁾ 魏凌楠¹⁾²⁾ 宗其军¹⁾²⁾
刘硕涵¹⁾²⁾ 李世伟¹⁾²⁾ 刘芝¹⁾²⁾ 张琪¹⁾²⁾ 徐瑛海¹⁾²⁾ 曹新宇¹⁾²⁾
杨奥¹⁾²⁾ 王浩林¹⁾²⁾³⁾ 杨冰⁴⁾ Andy Shen⁴⁾ 于葛亮^{1)2)†} 王雷^{1)2)‡}

1) (南京大学物理学院, 固体微结构物理国家重点实验室, 南京 210093)

2) (南京大学, 人工微结构科学与技术协同创新中心, 南京 210093)

3) (西安电子科技大学先进材料与纳米科技学院, 西安 710126)

4) (湖北九峰山实验室, 武汉 430206)

(2023年3月31日收到; 2023年5月9日收到修改稿)

范德瓦耳斯材料相对扭转到特定角度时, 会出现几乎零色散的莫尔平带, 从而产生一系列关联电子物态, 例如非常规超导、关联绝缘态和轨道磁性等. 在转角双层-双层石墨烯 (TDBG) 体系中, 能带带宽和拓扑性质可以通过栅极施加的电位移场原位调控, 使该体系成为良好的研究拓扑相变和强关联物理的量子模拟平台. 在一定的电位移场作用下, TDBG 中 C_{2x} 对称性破缺, 中性点附近的导带和价带会获得有限的陈数. 能带的拓扑性质与强相互作用驱动的对称性破缺使得可以在低磁场下实现并调控陈绝缘态. 本工作通过制备高质量 TDBG 器件, 在有限磁场下, 在莫尔原胞填充因子 $\nu=1$ 处发现了陈数为 4 的陈绝缘态. 同时还发现纵向电阻出现电阻峰并随平行磁场或温度升高而增强的现象, 这类似于 ^3He 中的 Pomeranchuk 效应, 推测 $\nu=1$ 处的陈绝缘态或许源于同位旋的极化.

关键词: 转角双层-双层石墨烯, 陈绝缘态, 电子关联**PACS:** 73.22.Pr, 73.21.Cd, 74.70.-b**DOI:** 10.7498/aps.72.20230497

1 引言

二维范德瓦耳斯材料堆叠形成的同质、异质结构中的莫尔超晶格成为研究拓扑与关联电子相的重要平台, 如转角石墨烯^[1-3](TBG), 六角氮化硼-石墨烯^[4-6], 转角过渡金属硫化物 (tTMDs)^[7,8] 等体系. 当两层石墨烯之间的转角接近“魔角”时, 由于

层间电子杂化导致能带的重构, 在电荷中性点附近出现孤立的莫尔平带. 当费米能级调控到平带中时, 电子动能猝灭, 电子发生局域化, 电子-电子之间库仑相互作用将占主导地位, 使电子之间的关联效应变得十分重要. 在 TBG 体系中, 实验上陆续发现了关联绝缘态^[2]、超导态^[3]、量子反常霍尔效应 (QAHE)^[9] 以及揭示能带拓扑性质的陈绝缘态. 然而关于 TBG 的实验工作绝大多数都只能通过制备不同转角的样品来调控能带结构与关联强度,

* 江苏省杰出青年基金 (批准号: BK20220066)、国家自然科学基金 (批准号: 12074173)、江苏省创新人才、企业家项目 (批准号: JSSCTD202101) 和中央高校基本科研业务费 (批准号: ZYTS23090) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: yugeliang@nju.edu.cn

‡ 通信作者. E-mail: leiwang@nju.edu.cn

这很容易受到材料应变和衬底等因素的影响, 导致一些实验现象难以重复.

转角双层-双层石墨烯 (TDBG) 作为转角双层石墨烯的衍生体系自然也受到了很多的关注. 伯纳尔堆叠的双层石墨烯在外加电位移场作用下会破坏空间反演对称性, 在电荷中性点处打开一个带隙 (0—200 meV)^[10]. 同样地, TDBG 体系的能带可以通过电位移场和转角 2 个参数来调控^[11], 更便于研究该体系的能带结构以及随之出现的关联电子相和相变的量子临界行为. 2019 年以来, 中国科学院物理研究所的张广宇团队^[12]、哈佛大学的 Kim 团队^[13] 以及麻省理工大学的 Jarillo-Herrero 团队^[14] 等分别在 AB-AB 堆叠的 TDBG 体系的莫尔平带半填充处发现了关联绝缘态, 并且该绝缘态随电位移场可调 (只出现在有限的电位移场范围内). 半填充处绝缘态能隙还随面内磁场增强而增大, 表明该态是自旋极化的. 在导带半填充附近, 还发现电阻会出现急剧降低的现象, 但是这种现象可能并不是超导态^[15], 其来源还有待研究. 2021 年, 苏黎世联邦理工学院的 Ensslin 团队还在转角角度为 2.37° 的 TDBG 体系中观察到了费米面嵌套导致

的关联电子-空穴态^[16]. 2022 年, 张广宇团队^[17] 在有限垂直磁场作用下 AB-BA 堆叠的 TDBG 器件中, 发现了谷极化的半填充绝缘态. 之前关于 TDBG 的工作主要关注于零磁场下的关联绝缘态, 然而磁场作用下的基态性质的相关研究却很缺乏.

与 TBG 体系显著不同的是: AB-AB 堆叠的 TDBG 体系具有 C_{2x} 对称性, 每个谷自由度中, 中性点附近能量最低的 2 条平带的总陈数保持为零. 而在外加电位移场作用下, C_{2x} 对称性被破坏, 能带可以产生非零陈数 C ^[18]. 因此, 通过调控费米能级, 使之进入到电荷中性点附近的孤立莫尔平带中, 同时外加电位移场, 可以产生出拓扑上非平庸 (陈数不为零, 表示填充整个子带时, 对于量子化霍尔电导的贡献) 的莫尔子带. 本文在莫尔原胞填充因子 $\nu = 1$ 处发现了陈数 C 为 4 的同位旋极化的陈绝缘态, 并且揭示了磁场和电位移场的共同作用在其形成过程中起到至关重要的作用.

2 实验与讨论

图 1(a) 为制备好的 TDBG 器件光学图. 器件

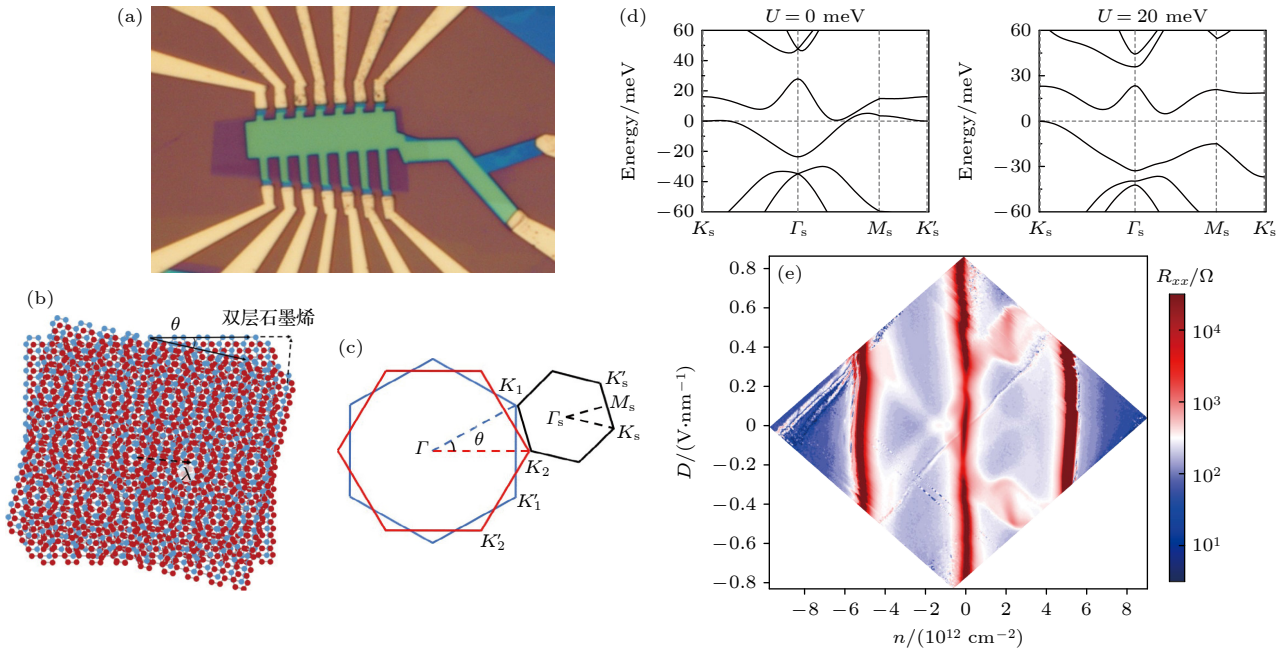


图 1 TDBG 器件的电输运测量 (a) 转角为 1.48° 的 TDBG 器件光学图; (b) 转角为 θ 的 TDBG 示意图; (c) 转角为 θ 的迷你布里渊区的示意图; (d) 不同电势能作用下 ($U = 0$ meV, $U = 20$ meV) TDBG 的能带图; (e) $T = 2$ K 时, 纵向电阻 R_{xx} 随载流子浓度 n 和电位移场 D 变化

Fig. 1. Transport measurement of TDBG device: (a) Optical image of TDBG device with a twist angle of 1.48°; (b) TDBG with a twist angle θ ; (c) schematic of mini Brillouin zone with a twist angle θ ; (d) energy band of TDBG at different electric potential energy $U = 0$ meV and $U = 20$ meV; (e) longitudinal resistance R_{xx} versus carrier concentration n and electric displacement field D at $T = 2$ K.

的堆叠顺序从上到下依次是石墨顶栅/六方氮化硼 (h-BN)/TDBG/六方氮化硼/石墨底栅/SiO₂ 及 Si 衬底. 其中原子级平整的石墨栅极相比于金属栅极缺陷更少, 外加电压更加均匀, 减少了在器件中引入的无序, 提高了器件质量. 本文使用机械剥离^[19]的双层石墨烯与 h-BN 材料, 并且采用撕裂继而堆叠^[20,21]的转移方法来制备转角为 1.48° 的 TDBG 叠层. 使用电子束曝光与刻蚀工艺将转移好的叠层加工成霍尔条, 最后用一维电接触的方法^[21]将封装起来的 TDBG 叠层加工成电子器件. 如图 1(b) 所示, TDBG 是将 2 片伯纳尔堆叠的双层石墨烯旋转一个相对角度 θ , 从而在整个器件区域形成周期性的莫尔条纹. 周期性莫尔条纹的波长 $\lambda = a/[2\sin(\theta/2)]$, 即相邻莫尔原胞的间距, 其中石墨烯的晶格常数 $a = 0.246$ nm. 图 1(c) 展示了上下 2 个双层石墨烯本身的布里渊区通过旋转形成的迷你布里渊区. 在小扭转角情况下, 莫尔超晶格的周期比双层石墨烯本身的晶格常数要大得多, 相应的倒空间的迷你布里渊区就会小得多, 电子被迷你布里渊区边界散射, 从而导致了能带的折叠. 图 1(d) 展示了利用推广到 TDBG 的 Bistritzer-MacDonald 模型, 取计算参数 $u = 0.088$ eV, $u_p = 0.1$ eV^[11] 计算得到的 TDBG 能带图, 其中外加电势分别为 $U = 0$ meV 和 $U = 20$ meV, 上下 2 层双层石墨烯之间的相对扭转角 $\theta = 1.48^\circ$. 通过在器件的顶栅和底栅施加上下偏压 V_{TG} 和 V_{BG} , 可以独立地调控器件的载流子浓度 n 和电位移场 D , 它们之间的转化关系可以表示为:

$$n = [C_{TG}(V_{TG} - V_{TG,0}) + C_{BG}(V_{BG} - V_{BG,0})]/e;$$

$$D = [-C_{TG}(V_{TG} - V_{TG,0}) + C_{BG}(V_{BG} - V_{BG,0})]/2,$$

其中 C_{TG} 和 C_{BG} 分别是顶部和底部栅极电容, 可以由顶部和底部材料的相对介电常数和厚度给出; $V_{TG,0}$ 和 $V_{BG,0}$ 分别是顶部和底部栅极电压偏移; e 为电荷常数.

图 1(e) 清晰地显示了温度为 2 K 时, 四端法测量的纵向电阻 R_{xx} 和莫尔原胞填充因子 ν ($\nu = 4n/n_s$, n_s 表示导带或价带完全填充时所对应的载流子浓度) 以及电位移场 D 之间的关系. TDBG 器件的转角角度 θ 可以通过能带全填充时, 绝缘态出现所对应的载流子浓度 n_s 的值来确定. 当上下两层之间的相对扭转角 θ 很小时, θ 与 n_s 之间的关系可以近似为:

$$A = \frac{4}{n_s} = \frac{\sqrt{3}}{2}\lambda^2 \approx \frac{\sqrt{3}a^2}{2\theta^2}.$$

在转角 $\theta = 1.48^\circ$ 的 TDBG 器件中, 导带填充侧的能带半填充处, 在 0.31—0.60 V/nm 和 -0.27—-0.52 V/nm 的电位移场范围内, 我们观察到了与之前报道相符的关联绝缘态及附近的光晕环. 这是由于电子侧能带的带宽在一定位移场范围下会大大减小, 从而关联效应也相应变强, 在半填充处发生了自旋极化, 产生关联绝缘态. 而空穴侧的电阻峰交叉特征则体现了受电位移场与载流子浓度调制的范霍夫奇点的存在. 根据之前的理论计算结果^[11], 零位移场下, 转角 $\theta = 2^\circ$ 的 TDBG 叠层的电荷中性点附近能量最低的电子和空穴带会打开一个带隙. 该带隙会随着转角减小而减小. 在 $\theta = 1.5^\circ$ 左右, 能量最低的电子带和空穴带会在布里渊区某一区域互相接触, 带隙关闭. 如图 1(d) 所示, 当扭转角 $\theta = 1.48^\circ$ 并且 $U = 0$ 时, 计算得到的能带图中很清楚地表明: 电荷中性点附近的能量最低的电子带和空穴带在倒空间 Γ_s 与 M_s 之间会互相交叉, 没有产生带隙. 而实验得到的电输运结果与计算结果并不相符, 当电位移场 $D = 0$ 时, 在电荷中性点处还存在一个绝缘态, 说明最低的导带和价带之间打开了一个带隙. 这可能是由于封装在 h-BN 之间的两层双层石墨烯分别处于不同的上下介电环境, 在晶体场的作用下产生了内建电场, 从而在电荷中性点处打开了能隙^[22,23].

接下来进行了一系列磁输运测量, 图 2(a), (b) 展示了当施加的电位移场 $D = 0$ 时, 纵向 (横向) 电阻 R_{xx} (R_{xy}) 与填充因子 ν 和垂直磁场 B_\perp 之间的朗道扇形图, 得到了磁场和周期性的莫尔超晶格势共同作用下的万尼尔图. 图 2(a) 中 R_{xx} 随垂直磁场 B_\perp 与填充因子 ν 变化而表现出的一系列极小值轨迹, 表明体系填充到了霍夫斯塔特能谱的能隙当中. 这些能隙序列的轨迹可以由丢番图方程描述:

$$n/n_0 = t\phi/\phi_0 + s,$$

其中 n 是载流子浓度, n_0 为每个莫尔原胞填充一个电子所需要的载流子浓度; $\phi = BA$ 是每个莫尔原胞内的磁通, A 是莫尔原胞的面积; $\phi_0 = h/e$ 是磁通量子^[24]; s 是布洛赫带填充指数, 代表 $B = 0$ 时, 每个莫尔原胞内填充的载流子数目; t 是朗道能级的填充因子, 与该量子霍尔态的陈数 C 相等, 描述了能带的拓扑性质, 同时也对应了边缘态的数目,

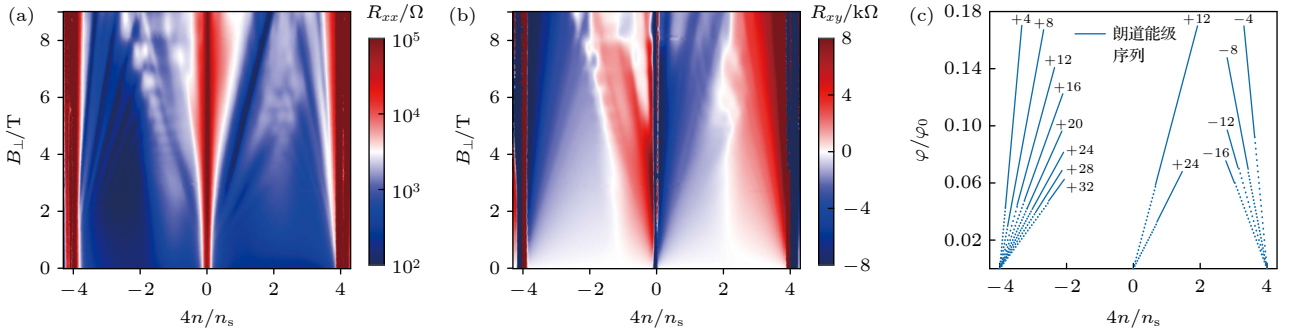


图 2 低温 $T = 2$ K, $D = 0$ 下的磁输运 (a) $D = 0$ 时, R_{xx} 随填充因子 $\nu = 4n/n_s$ 和垂直磁场 B_{\perp} 的变化; (b) $D = 0$ 时, 横向电阻 R_{xy} 随填充因子 $\nu = 4n/n_s$ 和垂直磁场 B_{\perp} 变化; (c) 从 (a), (b) 中提取得到的朗道能级序列 (蓝色)

Fig. 2. Magnetotransport of resistance at low temperature of $T = 2$ K and $D = 0$: (a) Longitudinal resistance R_{xx} versus filling factor $\nu = 4n/n_s$ and vertical magnetic field B_{\perp} at $D = 0$; (b) Hall resistance R_{xy} versus filling factor $\nu = 4n/n_s$ and vertical magnetic field B_{\perp} at $D = 0$; (c) Landau level (blue) extracted from figure (a) and (b).

即 [25,26]

$$R_{xy} = \frac{1}{C} \cdot \frac{h}{e^2}.$$

由实验测得的纵向电阻 R_{xx} 和横向电阻 R_{xy} , 还可以得到霍尔电导:

$$\sigma_{xy} = \frac{R_{xy}}{R_{xy}^2 + R_{xx}^2}.$$

结合这些纵向电阻极小值和横向电阻 (或者霍尔电导) 的平台值可以分析 TDBG 能带的拓扑性质. 根据图 2(a), (b) 中提取的朗道能级序列简略地标在如图 2(c) 中, 空穴填充侧出现朗道填充因子 t 从 4—24 的朗道能级序列, 而电子填充侧则有朗道填充因子 t 从 -4 到 -16 的序列, 中性点处有较为明显的 t 分别为 +12 和 +24 的朗道能级. 注意到外加电位移场 $D = 0$ 时, 图 2(a) 中纵向电阻的极小值只出现在 $s = -4, 0, 4$ 的填充处, 并且在同一填充下发展良好的朗道能级序列之间的间隔为 4, 表明此时体系还并没有出现同位旋的对称性破缺. 图 2(a) 中的全填充处的朗道序列符合相应计算得到的结果 [27].

图 3(a), (b) 展示了电位移场 $D = -0.42$ V/nm 时, 纵向电阻 R_{xx} 与横向电阻 R_{xy} 的磁输运结果. 图 3(c) 则是根据图 3(a) 和图 3(b) (图 3(f) 根据图 3(d) 和图 3(e)) 提取的朗道能级序列和陈绝缘态的轨迹图. 图 3(d) 和图 3(e) 则是当电位移场为 $D = 0.5$ V/nm 时, 纵向电阻 R_{xx} 与横向电阻 R_{xy} 的磁输运结果. 综合图 3(c) 和图 3(f) 分析可以发现, 在较低的磁场下, 电荷中性点左侧的朗道能级序列以 4 为间距递增, 仍对应于未破缺的 4 倍自旋/谷简并性. 然而随着磁场的增强, 自旋和谷所构成的味空间的简并性发生破缺, 出现了以 2 甚至 1 为

间隔的朗道能级序列. 电荷中性点右侧出现了 2 个单独的朗道能级序列, 即图 3(f) 中陈数 C 分别为 +6 和 +4 的 2 条斜线. 延长这 2 个朗道能级序列的轨迹与横轴交于 $s = 0$ 和 $s = 1$. 可以用 (C, s) 来表示电子侧的朗道能级序列. $s = 1$ 处出现的陈数 C 为 +4 的朗道能级就是所谓的陈绝缘态, 即电子侧的 (4, 1) 序列. 与 TBG 体系中发现的 (3, 1), (2, 2), (1, 3) 这些陈绝缘态相一致 [28–31]. $s = 1$ 处出现的陈绝缘态可能源于电子关联与能带拓扑共同作用导致的对称性破缺.

图 3(g), (h) 表示在垂直磁场 $B = 8.7$ T 时, (6, 0) 和 (4, 1) 所对应的态在小范围的填充范围内的纵向电阻 R_{xx} 和霍尔电导 σ_{xy} 的数值变化, 显示了其对应的霍尔电导数值满足量子化的条件和良好的纵向电阻极小值. 通过图 3(a), (d) 与图 2(a) 的对比可知, 当电位移场分别为 $D = -0.42$ V/nm 和 $D = 0.5$ V/nm 时, AB-AB 堆叠的 TDBG 中诱导出不为零的能带陈数, 而在零位移场的朗道扇图下则并没有出现陈绝缘态的迹象.

沿着丢番图方程所确定的纵向电阻极小值轨迹, 可以分析 (6, 0) 对应的朗道能级与 $s = 1$ 处出现的陈绝缘态在面外垂直磁场下的演化. 在图 3(a), (d) 中发现, 即使在很低的磁场下, (6, 0) 对应的朗道能级就已经出现, 这可能说明该态来自于 TDBG 在零磁场下的能带拓扑性质. $s = 1$ 处陈绝缘态的纵向电阻数值 R_{xx} 在磁场 7 T 左右趋于稳定. 类似于之前 TBG 的一些工作结果 [28–31], TDBG 中的陈绝缘态同样也需要一定大小的磁场来使其稳定, 这表明磁场在破坏时间反演对称性与增强相互作用方面可能扮演了重要角色.

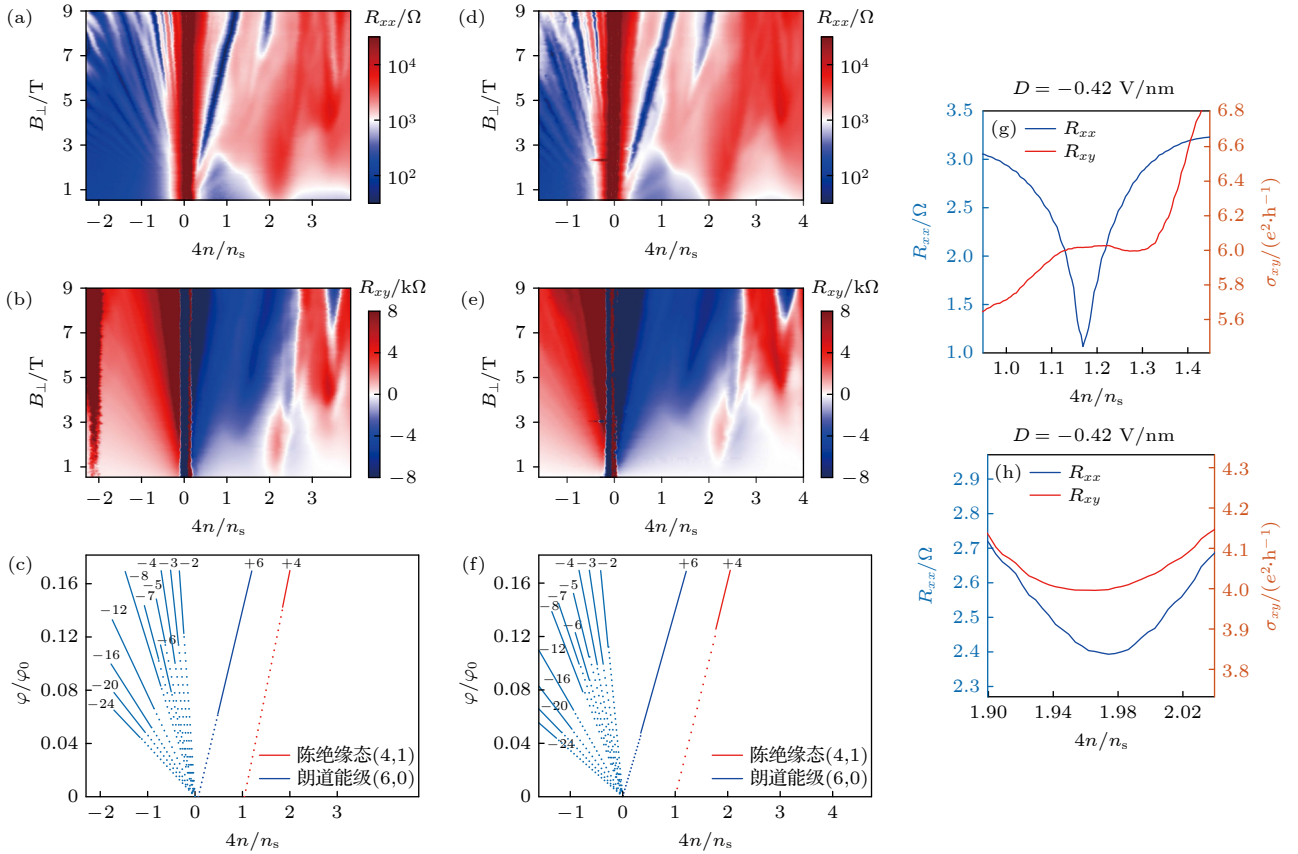


图 3 低温 ($T = 2$ K) 不同外加电位移场作用下的磁输运性质 (a) $D = -0.42$ V/nm 时, 纵向电阻 R_{xx} 随填充因子 ν 和垂直磁场 B_{\perp} 的变化; (b) $D = -0.42$ V/nm 时, 横向电阻 R_{xy} 随填充因子 ν 和垂直磁场 B_{\perp} 的变化; (c) 从图 3(a), (b) 中提取得到的朗道能级序列 (蓝色) 和陈绝缘态 (红色); (d) $D = 0.5$ V/nm 时, 纵向电阻 R_{xx} 随填充因子 ν 和垂直磁场 B_{\perp} 变化; (e) $D = 0.5$ V/nm 时, 横向电阻 R_{xy} 随填充因子 ν 和垂直磁场 B_{\perp} 变化; (f) 从图 3(d), (e) 中提取得到的朗道能级序列 (蓝色) 和陈绝缘态 (红色); (g) 当垂直磁场 $B_{\perp} = 8.7$ T 时, (6, 0) 所对应朗道能级的纵向电阻 R_{xx} 和霍尔电导 σ_{xy} ; (h) 当垂直磁场 $B_{\perp} = 8.7$ T 时, (4, 1) 所对应陈绝缘态的纵向电阻 R_{xx} 和霍尔电导 σ_{xy}

Fig. 3. Magnetotransport under different electric displacement field at low temperature $T = 2$ K: (a) Longitudinal resistance R_{xx} as a function of filling factor ν and vertical magnetic field B_{\perp} at $D = -0.42$ V/nm; (b) Hall resistance R_{xy} as a function of filling factor ν and vertical magnetic field B_{\perp} at $D = -0.42$ V/nm; (c) Landau level (blue) and Chern insulator (red) extracted from Fig. 3(a), (b); (d) longitudinal resistance R_{xx} as a function of filling factor ν and vertical magnetic field B_{\perp} at $D = 0.5$ V/nm; (e) Hall resistance R_{xy} as a function of filling factor ν and vertical magnetic field B_{\perp} at $D = 0.5$ V/nm; (f) Landau level (blue) and Chern insulator (red) extracted from Fig. 3(d) and Fig. 3(e); (g) longitudinal resistance R_{xx} and Hall conductance σ_{xy} of (6, 0) state at vertical magnetic field $B_{\perp} = 8.7$ T; (h) longitudinal resistance R_{xx} and Hall conductance σ_{xy} of (4, 1) state at vertical magnetic field $B_{\perp} = 8.7$ T.

由于最低能的 2 条平带具有自旋/谷构成的同位旋空间的四重简并, 陈绝缘态的总陈数与子带携带的陈数以及子带的填充有关, 所以先分析电荷中性点处的能带拓扑性质. 最近的理论计算得到的最低的价带陈数与转角 θ 和外加偏压 D 之间的相图, 在转角 $\theta = 1.5^{\circ}$ 附近, 随着施加的外加偏压从零开始增大, 单个谷中的最低价带的陈数可以依次变为 0, 3 和 2^[32]. (6, 0) 序列所对应态的陈数 C 可以理解为: 当费米能级填充到电荷中性点 (每个莫尔原胞中没有电子填充) 时, 所有空穴侧 K 和 K' 谷中平带的陈数之和 $C = 6$. 根据实验结果, 推测

空穴侧 K 谷中平带所携带的陈数为 +3. 这样 (4, 1) 对应的陈绝缘态的形成可能是: 当每个莫尔原胞内填充一个电子时, 电子之间的关联导致自旋/谷的极化, 使得电子侧又填充了 $C = -2$ 的子带, 从而 $C = 4$.

为了进一步研究 $s = 1$ 处的 $C = 4$ 陈绝缘态的起源, 我们在零磁场下进行了纵向电阻 R_{xx} 随着温度 T 变化的测量. 图 4(a) 是在 $D = -0.42$ V/nm 下, 纵向电阻 R_{xx} 随温度 T 和填充因子 ν 的二维图. 图 4(b) 则是来自于图 4(a) 的一系列不同温度的截线. 可以发现, 在电荷中性点以及半填充处 ($\nu = 2$) 的关联态电阻峰随着温度的升高而增大, 并且半填

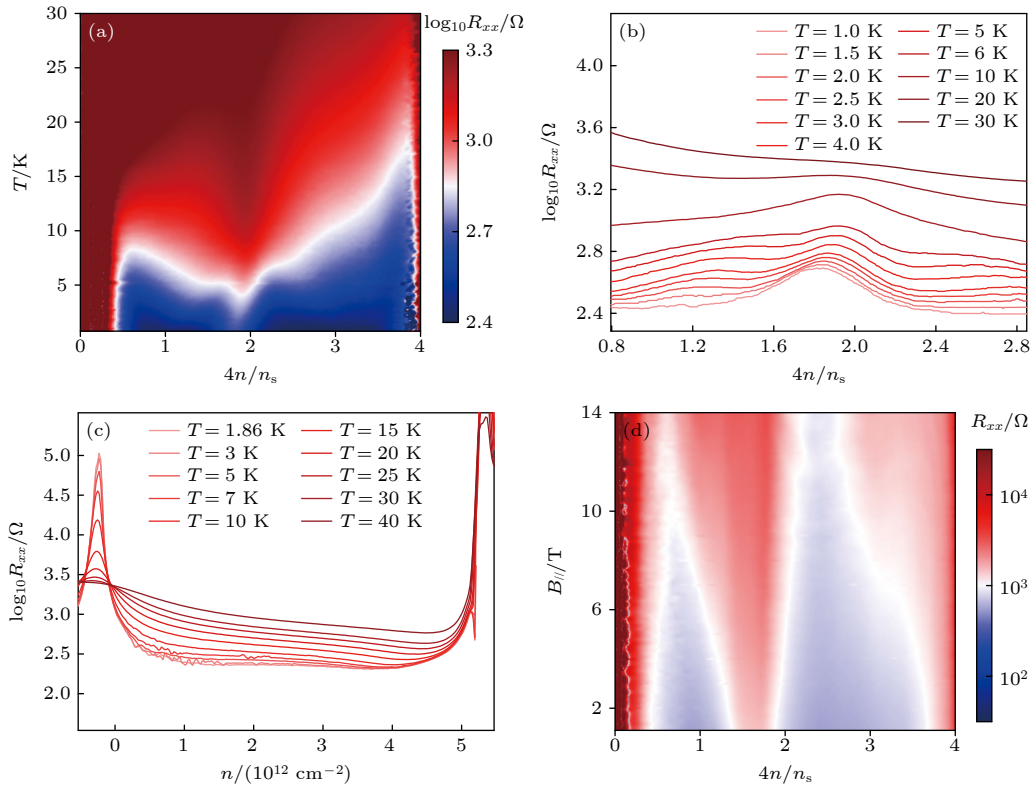


图 4 温度和并行磁场诱导的极化 (a) $B = 0$, $D = -0.42$ V/nm 时, 纵向电阻 R_{xx} 随填充因子 ν 和温度 T 变化; (b) 纵向电阻 R_{xx} 随填充因子 ν 变化, 取自图 4(a) 的一系列温度下的截线; (c) $D = 0$ 时, 一系列不同温度下纵向电阻 R_{xx} 随载流子浓度 n 变化; (d) $T = 0.2$ K 时, 纵向电阻 R_{xx} 作为填充因子 ν 和并行磁场 $B_{//}$ 函数

Fig. 4. Temperature and parallel magnetic field induced polarization: (a) Longitudinal resistance R_{xx} versus filling factor ν and temperature T at $B = 0$ and $D = -0.42$ V/nm; (b) longitudinal resistance R_{xx} versus filling factor ν extracted from Fig. 4(a) under a series of specific temperature; (c) longitudinal resistance R_{xx} versus carrier concentration n under a series of specific temperature at $D = 0$; (d) longitudinal resistance R_{xx} as a function of filling factor ν and parallel magnetic field $B_{//}$ at $T = 0.2$ K.

充处的电阻峰对应的填充 ν 随温度变化而发生偏移. 另外, 在 $T > 2$ K 时, $\nu = 1$ 和 $\nu = 3$ 附近还出现了额外的电阻凸起. 其中 $\nu = 1$ 处的电阻凸起要明显大于 $\nu = 3$ 处. 当 $T > 5$ K 时, 这些额外的电阻凸起逐渐展宽并消失. 到 $T = 30$ K 时, 半填充在内的电阻峰也被完全抹平, 在此温度下器件在各个填充下展示出一种普遍的行为, 表明器件的电阻可能主要来源于电子-声子散射. 图 4(c) 则表示零位移场作用时, 一系列不同温度下, R_{xx} 随载流子浓度 n 变化而变化. 相较于图 4(b), (c) 中半填充、 $\nu = 1$ 和 $\nu = 3$ 处并没有表现出明显的电阻凸起. 中性点到全填充之间的 R_{xx} 随温度增大而增大, 表现出金属特性, 并且与填充无关. 图 4(d) 展示了在 $T = 200$ mK 下, 纵向电阻 R_{xx} 与载流子填充 ν 和并行磁场 $B_{//}$ 之间的关系. 可以看出, $B_{//} > 7$ T 时, $\nu = 1$ 和 $\nu = 3$ 附近同样出现了额外的电阻峰. 而 $\nu = 1$ 附近出现的电阻峰所对应的边界也会随着面内磁场 $B_{//}$ 的增强而变大. 这种并行磁场 $B_{//}$ 与温

度驱动下的电阻峰以及对应的填充因子偏移与之前 TBG 的实验结果类似, 可能来自于同位旋的 Pomeranchuk 效应^[33]. 在面内磁场与熵的驱动下, 强烈涨落的局域磁矩被固定, 低磁场 (温) 下的同位旋非极化顺磁态转变为高磁场 (温) 下的自旋极化或谷极化的同位旋铁磁态, $\nu = 1$ 和 $\nu = 3$ 附近出现的额外的电阻峰来自于中性的低能激发与电荷的散射, 标志着同位旋铁磁相与同位旋非极化相之间的边界. 我们观察到的这种 Pomeranchuk 效应与垂直磁场驱动下 $\nu = 1$ 处发现的陈数 $C = 4$ 的陈绝缘态相一致, 从侧面证明了在 $\nu = 1$ 处确实存在一个同位旋铁磁态.

3 结 论

本文在转角 $\theta = 1.48^\circ$ 的高质量 TDBG 器件中发现了 $\nu = 1$ 处的铁磁陈绝缘态, 并观察了其在垂直磁场下的演化. 发现电位移场与磁场对调控

TDBG 能带的关联和拓扑性质至关重要. 在一定范围的电位移场作用下, C_{2x} 对称性破缺, 由时间反演对称性联系的 K 谷和 K' 谷子带将获得相反的有限陈数. 最近关于 TBG 系统的一些理论工作发现, 能谷的拓扑性质对决定基态以及低能激发至关重要, 其中带电荷 $2e$ 的拓扑涡旋激发可能诱导超导电性^[34]. 在 TDBG 系统中, 虽然并没有出现超导电性, 但是在 C_{2x} 对称性被破缺的光晕环内同样出现了电阻急剧下降的类超导现象. 结合平行磁场与变温测量, 发现在 $\nu = 1$ 处存在强烈涨落的磁矩, 随着磁场增强或升温而冻结出现铁磁金属相, 这或许解释了本实验中发现的在 $\nu = 1$ 处的陈绝缘态及之前的工作报道过的类超导现象. 结果建议, 在有限温下, 体系的电阻由被拓扑性质决定的低能磁激发与正常电子的散射所主导, 并且在时间反演对称性被垂直磁场破缺后, 体系将出现同位旋极化诱导的陈绝缘态. 本工作作为利用范德瓦耳斯莫尔体系模拟强关联物理、研究非常规超导机理以及其他新奇的拓扑物态提供了新途径.

参考文献

- [1] Bistritzer R, MacDonald A H 2011 *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.* **108** 12233
- [2] Cao Y, Fatemi V, Demir A, Fang S, Tomarken S L, Luo J Y, Sanchez-Yamagishi J D, Watanabe K, Taniguchi T, Kaxiras E, Ashoori R C, Jarillo-Herrero P 2018 *Nature* **556** 80
- [3] Cao Y, Fatemi V, Fang S, Watanabe K, Taniguchi T, Kaxiras E, Jarillo-Herrero P 2018 *Nature* **556** 43
- [4] Dean C R, Wang L, Maher P, Forsythe C, Ghahari F, Gao Y, Katoch J, Ishigami M, Moon P, Koshino M, Taniguchi T, Watanabe K, Shepard K L, Hone J, Kim P 2013 *Nature* **497** 598
- [5] Ponomarenko L A, Gorbachev R V, Yu G L, Elias D C, Jalil R, Patel A A, Mishchenko A, Mayorov A S, Woods C R, Wallbank J R, Kruczynski M M, Piot B A, Potemski M, Grigorieva I V, Novoselov K S, Guinea F, Fal'ko V I, Geim A K 2013 *Nature* **497** 594
- [6] Hunt B, Sanchez-Yamagishi J D, Young A F, Yankowitz M, LeRoy B J, Watanabe K, Taniguchi T, Moon P, Koshino M, Jarillo-Herrero P, Ashoori R C 2013 *Science* **340** 1427
- [7] Wang L, Shih E M, Ghiotto A, Xian L, Rhodes D A, Tan C, Claassen M, Kennes D M, Bai Y S, Kim B, Watanabe K, Taniguchi T, Zhu X Y, Hone J, Rubio A, Pasupathy A N, Dean C R 2020 *Nat. Mater.* **19** 861
- [8] Ghiotto A, Shih E M, Pereira G S, Rhodes D A, Kim B, Zang J W, Millis A J, Watanabe K, Taniguchi T, Hone J, Wang L, Dean C R, Pasupathy A N 2021 *Nature* **597** 345
- [9] Serlin M, Tschirhart C L, Polshyn H, Zhang Y, Zhu J, Watanabe K, Taniguchi T, Balents L, Young A F 2020 *Science* **367** 900
- [10] Zhang Y, Tang T T, Girit C, Hao Z, Martin M C, Zettl A, Crommie M F, Shen Y R, Wang F 2009 *Nature* **459** 820
- [11] Koshino M 2019 *Phys. Rev. B* **99** 235406
- [12] Shen C, Chu Y B, Wu Q S, Li N, Wang S P, Zhao Y C, Tang J, Liu J Y, Tian J P, Watanabe K, Taniguchi T, Yang R, Meng Z Y, Shi D X, Yazyev O V, Zhang G Y 2020 *Nat. Phys.* **16** 520
- [13] Liu X M, Hao Z Y, Khalaf E, Lee J Y, Ronen Y, Yoo H, Najafabadi D H, Watanabe K, Taniguchi T, Vishwanath A, Kim P 2020 *Nature* **583** 221
- [14] Cao Y, Rodan-Legrain D, Rubies-Bigorda O, Park J M, Watanabe K, Taniguchi T, Jarillo-Herrero P 2020 *Nature* **583** 215
- [15] He M H, Li Y H, Cai J Q, Liu Y, Watanabe K, Taniguchi T, Xu X D, Yankowitz M 2021 *Nat. Phys.* **17** 26
- [16] Rickhaus P, De-Vries F K, Zhu J H, Portoles E, Zheng G, Masseroni M, Kurzman A, Taniguchi T, Watanabe K, MacDonald A H, Ihn T, Ensslin K 2021 *Science* **373** 1257
- [17] Liu L, Zhang S H, Chu Y B, Shen C, Huang Y, Yuan Y L, Tian J P, Tang J, Ji Y R, Yang R, Watanabe K, Taniguchi T, Shi D X, Liu J P, Yang W, Zhang G Y 2022 *Nat. Commun.* **13** 3292
- [18] Liu J P, Dai X 2020 *Acta Phys. Sin.* **69** 147301 (in Chinese) [刘健鹏, 戴希 2020 物理学报 **69** 147301]
- [19] Novoselov K S, Geim A K, Morozov S V, Jiang D, Zhang Y, Dubonos S V, Grigorieva I V, Firsov A A 2004 *Science* **306** 666
- [20] Kim K, Yankowitz M, Fallahazad B, Kang S, Movva H C, Huang S Q, Larentis S, Corbet C M, Taniguchi T, Watanabe K, Banerjee S K, LeRoy B J, Tutuc E 2016 *Nano Lett.* **16** 1989
- [21] Wang L, Meric I, Huang P Y, Gao Q, Gao Y, Tran H, Taniguchi T, Watanabe K, Campos L M, Muller D A, Guo J, Kim P, Hone J, Shepard K L, Dean C R 2013 *Science* **342** 614
- [22] Haddadi F, Wu Q S, Kruchkov A J, Yazyev O V 2020 *Nano Lett.* **20** 2410
- [23] Rickhaus P, Zheng G, Lado J L, Lee Y J, Kurzman A, Eich M, Pisoni R, Tong C Y, Garreis R, Gold C, Masseroni M, Taniguchi T, Watanabe K, Ihn T, Ensslin K 2019 *Nano Lett.* **19** 8821
- [24] Wannier G H 1978 *Phys. Status Solidi B* **88** 757
- [25] Thouless D J, Kohmoto M, Nightingale M P, Den-Nijs M 1982 *Phys. Rev. Lett.* **49** 405
- [26] Streda P 1982 *J. Phys. C: Solid State Phys.* **15** L1299
- [27] Wu Q S, Liu J P, Guan Y F, Yazyev O V 2021 *Phys. Rev. Lett.* **126** 056401
- [28] Nuckolls K P, Oh M, Wong D, Lian B, Watanabe K, Taniguchi T, Bernevig B A, Yazdani A 2020 *Nature* **588** 610
- [29] Saito Y, Ge J Y, Rademaker L, Watanabe K, Taniguchi T, Abanin D A, Young A F 2021 *Nat. Phys.* **17** 478
- [30] Das I, Lu X B, Arbeitman J H, Song Z D, Watanabe K, Taniguchi T, Bernevig B A, Efetov D K 2021 *Nat. Phys.* **17** 710
- [31] Bhowmik S, Ghawri B, Leconte N, Appalakondaiah S, Pandey M, Mahapatra P S, Lee D, Watanabe K, Taniguchi T, Jung J, Ghosh A, Chandni U 2022 *Nat. Phys.* **18** 639
- [32] Wang Y X, Li F X, Zhang Z Y 2021 *Phys. Rev. B* **103** 115201
- [33] Saito Y, Yang F Y, Ge J Y, Liu X X, Taniguchi T, Watanabe K, Li J, Berg E, Young A F 2021 *Nature* **592** 220
- [34] Khalaf E, Chatterjee S, Bultinck N, Zaletel M P, Vishwanath A 2021 *Sci. Adv.* **7** 5299

SPECIAL TOPIC—Two dimensional twisted moiré superlattice • COVER ARTICLE

Isospin polarized Chern insulator state of $C = 4$ in twisted double bilayer graphene*

Liu Yi-Jun¹⁾²⁾ Chen Yi-Wei¹⁾²⁾ Zhu Yu-Jian¹⁾²⁾ Huang Yan¹⁾²⁾
 An Dong-Dong¹⁾²⁾ Li Qing-Xin¹⁾²⁾ Gan Qi-Kang¹⁾²⁾ Zhu Wang¹⁾²⁾
 Song Jun-Wei¹⁾²⁾ Wang Kai-Yuan¹⁾²⁾ Wei Ling-Nan¹⁾²⁾ Zong Qi-Jun¹⁾²⁾
 Liu Shuo-Han¹⁾²⁾ Li Shi-Wei¹⁾²⁾ Liu Zhi¹⁾²⁾ Zhang Qi¹⁾²⁾ Xu Ying-Hai¹⁾²⁾
 Cao Xin-Yu¹⁾²⁾ Yang Ao¹⁾²⁾ Wang Hao-Lin¹⁾²⁾³⁾ Yang Bing⁴⁾
 Andy Shen⁴⁾ Yu Ge-Liang^{1)2)†} Wang Lei^{1)2)‡}

1) (*National Laboratory of Solid State Microstructures, School of Physics, Nanjing University, Nanjing 210093, China*)

2) (*Collaborative Innovation Center of Advanced Microstructures, Nanjing University, Nanjing 210093, China*)

3) (*School of Advanced Materials and Nanotechnology, Xidian University, Xi'an 710126, China*)

4) (*Hubei Jiufengshan Laboratory, Wuhan 430206, China*)

(Received 31 March 2023; revised manuscript received 9 May 2023)

Abstract

A flat band with nearly zero dispersion can be created by twisting the relative orientation of van der Waals materials, leading to a series of strongly correlated states, such as unconventional superconductivity, correlated insulating state, and orbital magnetism. The bandwidth and topological property of electronic band structure in a twisted double bilayer graphene are tunable by an external displacement field. This system can be an excellent quantum simulator to study the interplay between topological phase transition and strong electron correlation. Theoretical calculation shows that the C_{2x} symmetry in twisted double bilayer graphene (TDBG) can be broken by an electric displacement field, leading the lowest conduction and valence band near charge neutrality to obtain a finite Chern number. The topological properties of the band and the symmetry breaking driven by the strong interaction make it possible to realize and regulate the old insulation state at low magnetic fields. Hence Chern insulator may emerge from this topological non-trivial flat band under strong electron interaction. Here, we observe Chern insulator state with Chern number 4 at filling factor $\nu = 1$ under a small magnetic field on twisted double bilayer graphene with twist angle 1.48° . Moreover, the longitudinal resistance shows a peak under a parallel magnetic field and increases with temperature or field rising, which is similar to the Pomeranchuk effect in ^3He . This phenomenon indicates that Chern insulator at $\nu = 1$ may originate from isospin polarization.

Keywords: twisted double bilayer graphene, Chern insulator state, electron correlation

PACS: 73.22.Pr, 73.21.Cd, 74.70.-b

DOI: 10.7498/aps.72.20230497

* Project supported by the Jiangsu Outstanding Youth Project, China (Grant No. BK20220066), the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 12074173), the Program for Innovative Talents and Entrepreneur in Jiangsu Province, China (Grant No. JSSCTD202101), and the Fundamental Research Funds for the Central Universities of China (Grant No. ZYTS23090).

† Corresponding author. E-mail: yugeliang@nju.edu.cn

‡ Corresponding author. E-mail: leiwang@nju.edu.cn

专题: 二维转角莫尔超晶格

叠层/转角二维原子晶体结构与极化激元的近场光学表征*

徐琨淇[†] 胡成 沈沛约 马赛群 周先亮 梁齐 史志文[‡]

(上海交通大学物理与天文学院, 人工结构及量子调控教育部重点实验室, 上海 200240)

(2022年11月10日收到; 2022年12月7日收到修改稿)

极化激元是一种光与物质发生强相互作用形成的准粒子, 可以极大地压缩光波长, 提供一种突破衍射极限的光调制方式, 为纳米光子学、非线性光学、量子光学等相关学科的发展提供了重要支持. 范德瓦耳斯二维原子晶体是研究极化激元的理想平台, 通过叠层、转角可以为极化激元的调控提供额外的自由度, 从而展示出新颖的光学结构和极化激元特性. 本文以近场光学为主要研究方法, 对近几年出现的叠层及转角二维原子晶体的各种光学结构及极化激元进行综述. 综述内容包括叠层石墨烯的畴结构、转角二维原子晶体的莫尔超晶格结构、转角二维拓扑极化激元、转角石墨烯手性等离激元等. 最后, 对叠层/转角二维原子晶体及其极化激元的未来发展进行展望.

关键词: 转角二维原子晶体, 极化激元, 莫尔超晶格, 扫描近场光学显微技术**PACS:** 71.36.+c, 07.79.Fc**DOI:** 10.7498/aps.72.20222145

1 引言

极化激元是光与物质中携带电偶极或磁偶极的元激发之间发生强耦合形成的准粒子^[1]. 极化激元可以大幅度压缩光波长, 是一种有效突破衍射极限的光调制方式, 为纳米光子学等前沿学科的发展提供了重要的支持, 在未来信息传输与存储、光学传感检测等领域具有广泛的应用前景.

范德瓦耳斯二维原子晶体是研究极化激元的理想平台, 一方面因为材料尺寸减小带来了新颖的光学性质, 另一方面因为二维原子晶体能非常容易地通过层数、化学掺杂、外场等条件调控其能带结构、载流子浓度、介电环境等光学依赖的因素^[2]. 不仅如此, 通过堆叠、组装可以进一步丰富二维原子晶体结构, 双层或多层二维原子晶体通过转角提供

了一个额外的自由度, 使范德瓦耳斯层间发生轻微晶格失配, 引入层间杂化或耦合^[3,4]. 因此, 叠层及转角操作允许两个二维原子晶体重新组合并展示出单层材料所不具备的光学结构, 并表现出新的极化激元性质. 比如, 叠层石墨烯中出现的畴结构、转角二维原子晶体中出现的莫尔超晶格网络、转角二维材料中出现的拓扑极化激元等.

根据二维原子晶体中偶极子类型的不同, 极化激元主要包含以下几种类型: 自由电子体系中电子振荡为主导的表面等离极化激元^[5], 极性晶体中晶格振动为主导的声子极化激元^[6], 半导体中电子-空穴对激发过程中的激子极化激元^[7,8]等. 实验上用于研究极化激元的技术手段主要包括电子能量损失谱^[9]、远场光学成像及光谱^[10]、扫描近场光学显微技术 (scanning near-field optical microscopy, SNOM) 等. 其中, SNOM 技术在研究极化激元方面

* 松山湖材料实验室开放课题基金 (批准号: 2021SLABFK07)、国家重点研发计划 (批准号: 2021YFA1202902)、国家自然科学基金 (批准号: 12074244) 和中国博士后科学基金 (批准号: 2022M712087) 资助的课题.

[†] 通信作者. E-mail: xukunqi@sjtu.edu.cn

[‡] 通信作者. E-mail: zwshi@sjtu.edu.cn

具有其独特优势. 首先, SNOM 是一种实空间成像技术, 可以直接对极化激元波进行成像, 并具有优秀的分辨率和解析力 [11]. 由于倏逝场的局域性, SNOM 空间分辨率远超远场光学衍射极限达到纳米尺度 [12,13]. 其次, 借助于原子力显微镜纳米尺度的针尖, 倏逝光场具有很宽的动量范围, 可以激发不同动量能量的极化激元, 实现激发检测同步进行. 此外, SNOM 可在大气环境中工作、操作简单且对被测样品无损. 因此, SNOM 技术已广泛用于低维材料极化激元的探索研究中.

本文拟对叠层及转角二维原子晶体所形成的各种光学结构及其极化激元进行综述, 重点关注基于散射型扫描近场显微技术的极化激元性质研究. 内容主要涵盖如下几个方面: 首先是对散射型扫描近场光学显微镜的结构和工作原理进行简要介绍; 然后介绍几种常用的叠层及转角样品制备方法; 接下来详细介绍不同转角及叠层二维原子晶体的结构特性和对应的等离激元性质, 包括双层和三层石墨烯构成的堆叠畴和畴壁结构以及借助探针技术对其光学畴壁的纳米尺度操纵、几种转角二维原子晶体的莫尔超晶格结构、转角双层二维原子晶体的拓扑极化激元、转角双层石墨烯的手性等离激元; 最后展望叠层及转角二维原子晶体的潜在应用及未来可能的发展方向.

2 扫描近场光学显微技术介绍

扫描近场光学显微技术是研究极化激元的主

要方法之一, 其装置以原子力显微镜 (AFM) 为基础, 硬件系统主要由激光光源、扫描探针显微镜和光信号收集单元构成. 早期的扫描近场光学显微镜采用光纤探针作为红外光激励源, 后来被更高分辨率和信噪比的针尖散射型设计所取代 [14,15]. 散射型扫描近场光学显微镜 (scattering-type SNOM 或 s-SNOM) 的结构及工作原理如图 1 所示, 红外光汇聚到针尖-样品微区, 散射的部分近场信号沿原路返回, 经分束片反射, 最终到达光探测器.

需要指出的是, 由于散射式扫描近场光学显微镜的光路是开放的, 探测器收集到的光不仅包含针尖散射出来的样品近场光信号, 还含有探针悬臂及样品散射的远场背景光. 为了得到纯净的近场光信号, 通常采用针尖轻敲 (tapping) 模式, 并利用锁相放大器解调将近场光与远场光分离. 具体地, 让 AFM 探针以其谐振频率 ω_0 振动, 振幅约 50—100 nm. 考虑到近场光主要分布在针尖尖端几纳米的空间范围内, 因此每个振动周期仅在针尖和样品接触的一瞬间会散射出近场信号, 所以近场信号的波形是快速变化的周期性脉冲序列, 其傅里叶变换频谱中包含较多高阶分量 (见图 2). 而来自准静态样品的远场散射背景光则近似为一个不随时间变化的常数; 来自简谐振动针尖散射的远场背景光主要表现为简谐函数波形, 其傅里叶变换频谱主要成分在针尖振动的基频 ω_0 上 (见图 2). 因此, 提取散射光中高阶频率 ($2\omega_0$, $3\omega_0$ 或 $4\omega_0$) 成分, 即可有效地抑制远场背景光, 得到较纯净的具有高空间分辨的近场光信号.

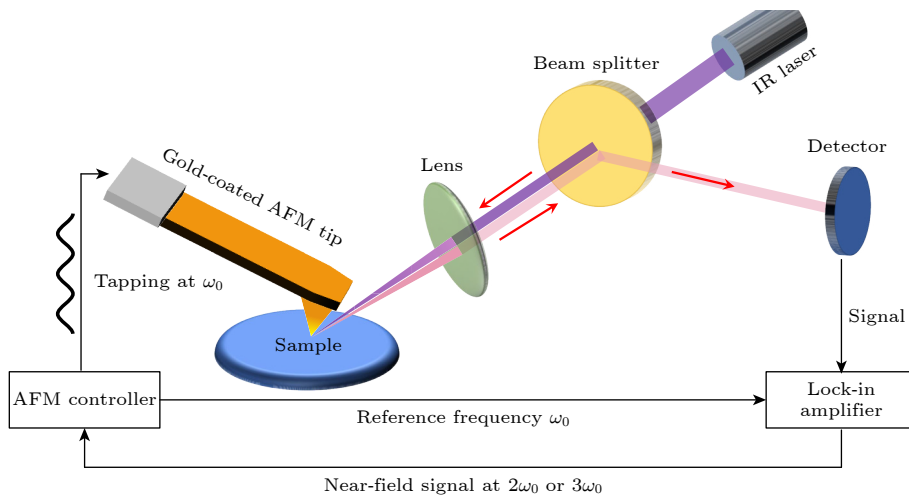


图 1 散射型扫描近场光学显微镜示意图

Fig. 1. Schematic diagram of a scattering-type scanning near-field optical microscope (s-SNOM).

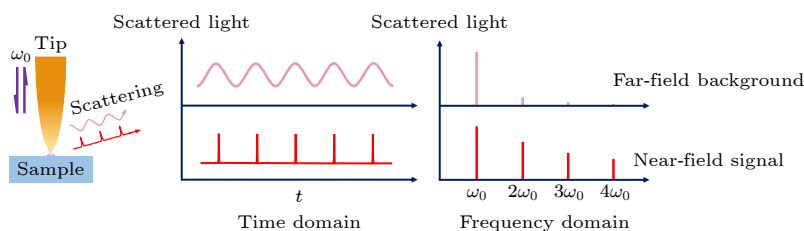


图 2 近场光信号与远场背景光信号的波形及其频谱示意图

Fig. 2. Schematic diagram of the waveforms and Fourier components of near-field optical signal and far-field background noise.

运用 s-SNOM 探测材料极化激元的工作原理如下. 将激光汇聚在纳米尺度的金属针尖上, 在针尖场增强效应作用下产生场强数百倍的局域光场. 该局域光场由于空间受限而包含一个宽动量范围, 有助于实现极化激元与自由传播光之间的动量匹配, 从而有效地激发被测试样品中的极化激元. 针尖局域光场激发的极化激元将沿着样品传播, 并在边界处发生反射. 反射的极化激元波与针尖尖端处的局域光场发生干涉, 干涉的局域光场会改变针尖尖端处散射的光信号强度. 该散射信号可被置于远场位置的光探测器检测到^[2,16], 再结合 AFM 的面扫描功能就可实现样品中极化激元干涉图案的实空间成像. 基于所测干涉图案可计算出极化激元的波长和品质因子等信息, 进而获得极化激元的色散关系.

3 叠层及转角二维原子晶体的制备和调控

叠层/转角二维原子晶体可以通过多种方案制备, 包括干法和湿法转移技术、生长合成技术、折叠技术及转角二维原子晶体的原位调控技术. 不同的制备方案各有利弊, 且各自具有不同的适用范围, 接下来将依次简要介绍几种实验室常用的制备技术.

3.1 转移技术

转移技术主要分为干法转移以及湿法转移, 该技术可以在转移的过程中实现叠层操作和调整转角, 是实验室制备叠层及转角二维原子晶体最为常用的技术方案之一.

干法转移主要是以高分子有机物 (如聚碳酸亚丙酯 PPC、聚碳酸酯 PC、聚二甲基硅氧烷 PDMS 等) 作为转移媒介, 利用不同温度下与高分子有机物的黏度变化来实现转移^[17]. 由于材料只有其中

一侧与有机物接触, 在制备完成后这层有机物残留最终可以被等离子体退火过程处理, 这使得所制备的叠层二维材料界面较为干净, 非常有利于后续研究, 其流程原理如图 3(a)–(h) 所示. 基于干法转移发展而来的“撕裂堆叠”(shear and stacking) 技术可实现二维材料更为精准的转移 (最高 0.1° 的转角控制), 界面也较为洁净^[17]. 干法转移是目前制备高质量叠层/转角二维原子晶体优先考虑的方法.

湿法转移的主要操作方法是通过对刻蚀材料基底使其悬浮在液体表面, 然后使用待转移的基底将材料从液体中取出. 在制备转角二维材料时, 可在材料生长合成前先将衬底的某个区域进行疏水处理, 在生长出大面积二维材料后, 将材料浸入液体中. 在液体的作用下, 疏水区域的二维材料依然可以附着在衬底上, 而在亲水侧会悬浮在液体中, 再将衬底缓慢从亲水侧拉出, 从而完成材料的制备^[18]. 这种方法通常适用于大面积材料的转移, 其缺点是需要与刻蚀液体接触, 这就不可避免地使残留的有机污染物被封装在材料与衬底之间.

3.2 生长合成技术

转移技术目前已被广泛使用, 然而该技术对污染物、尺寸和晶格方向的精确控制依然存在一定程度的不足, 从而限制了许多实际应用. 为了弥补这些不足, 生长合成技术提供了一种自下而上的生长策略, 可以带来理想的效果. 生长合成技术包括物理气相沉积 (PVD)、化学气相沉积 (CVD)、原子层沉积 (ALD)、分子束外延生长 (MBE) 等. 最近, Liu 等^[19] 使用 CVD 方法制备出任意转角的大面积双层石墨烯. 到目前为止, 生长合成技术被认为是低成本、大面积、高质量的制备叠层/转角二维原子晶体极有前景的技术方案.

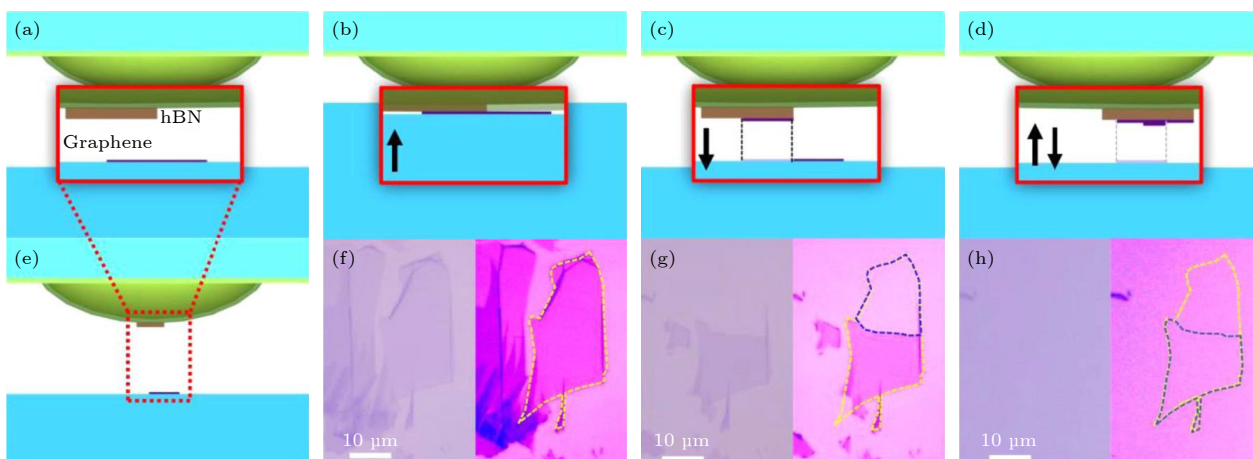


图 3 干法转移制备转角石墨烯的流程原理图 (a),(e) 二维材料拾取示意图, 红色框表示半球形基板的放大视图; (b)–(d) 和 (f)–(h) 连续堆叠步骤的示意图和相应光学显微照片^[17]

Fig. 3. Schematic diagram of the dry transfer to fabricate twisted bilayer graphene^[17]: (a),(e) Schematic diagram of layer pick-up, the red box represents a zoom-in view of the hemispherical handle substrate; (b)–(d) and (f)–(h) the schematic diagrams and optical micrographs of successive stacking steps^[17].

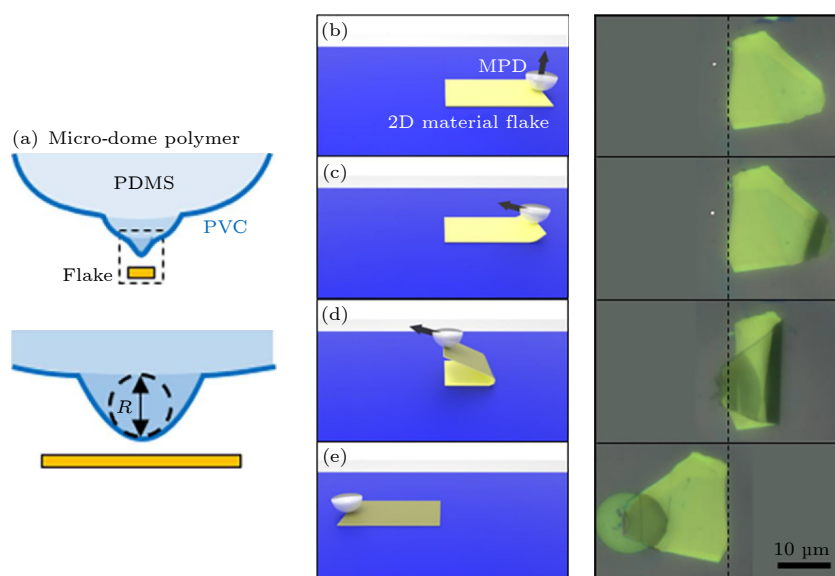


图 4 基于微型半球状聚合物凝胶的二维材料薄片折叠技术原理图^[21] (a) PDMS 微型半球状聚合物凝胶结构示意图; (b)–(e) 二维材料薄片折叠连续操作示意图和相应光学显微照片

Fig. 4. Schematic diagram of two-dimensional material sheet folding technology based on microdome polymer gel^[21]: (a) Schematic diagram of the structure of PDMS microdome polymer gel; (b)–(e) the schematic illustrations of folding two-dimensional material sheet and corresponding optical micrographs of successive steps.

3.3 折叠技术

折叠技术是一种获得同质叠层二维原子晶体结构的一种快速且相对容易的方法. 二维材料通过相对较弱的范德瓦耳斯力相互作用结合在衬底上, 因此二维材料与衬底表面之间的相互作用可以通过其他更强的力来打破. 早期的研究发现, SiO₂ 衬底上的薄层石墨烯材料可以在被水冲洗后发生折叠^[20], 但这种方案并不可控. 为了克服这个问题, 研究人员发展出了通过高分子有机薄膜吸附二维

材料折叠的方案, 这使得折叠过程变得更加可控, 同时制备出的样品层间也非常干净 (见图 4)^[21]. 最近, 折叠技术又得到了进一步的发展, 即使用扫描隧道显微镜探针吸附二维材料的一角, 然后进行堆叠, 该技术具有原子级的堆叠精度、不引入杂质以及可重复操作的优点^[22].

3.4 转角二维原子晶体的原位调控技术

使用以上方案制备出的材料与器件, 一旦制备

完成, 通常很难再对其转角进行调控, 为此, 研究人员发展出了多种二维原子晶体转角原位调控的技术. 其中, 采用高分子有机薄膜吸附叠层二维材料并操纵其转角是实验室较为常用的技术. 该技术在叠层二维材料上使用电子束光刻 (EBL) 工艺制作聚甲基丙烯酸甲酯 (PMMA) 层, 并用 PDMS 微型半球状凝胶作为操纵器, 接触并操纵 PMMA 层旋转, 进而使叠层二维材料实现转角操作 (如图 5(a)—(c))^[23]. 最近, Hu 等^[24] 发展出了一种使用 AFM 探针操纵双层二维原子晶体转角的原位调控技术 (如图 5(d), (e)). 利用二维原子晶体在非公度状态下的超滑效应, 可以使得其层间轻易发生相对滑动^[25,26].

该技术的独特之处在于, 在上下两层石墨烯之间, 插入了原子级厚的 hBN 空心齿轮结构, 在齿轮的中间空心区域, 上下两层石墨烯接触, 形成转角区域. 使用 AFM 探针推动 hBN 齿轮, 能够精确地控制石墨烯重叠区域的扭转角度. 这一技术为研究双层石墨烯的转角效应提供了机会, 可以在很大程度上推进转角光电子学的研究.

4 二维原子晶体堆叠次序及堆叠畴壁的近场光学表征

叠层二维原子晶体会因为不同的堆叠形式产生线缺陷或原子重构等现象, 这可能会出现由于层

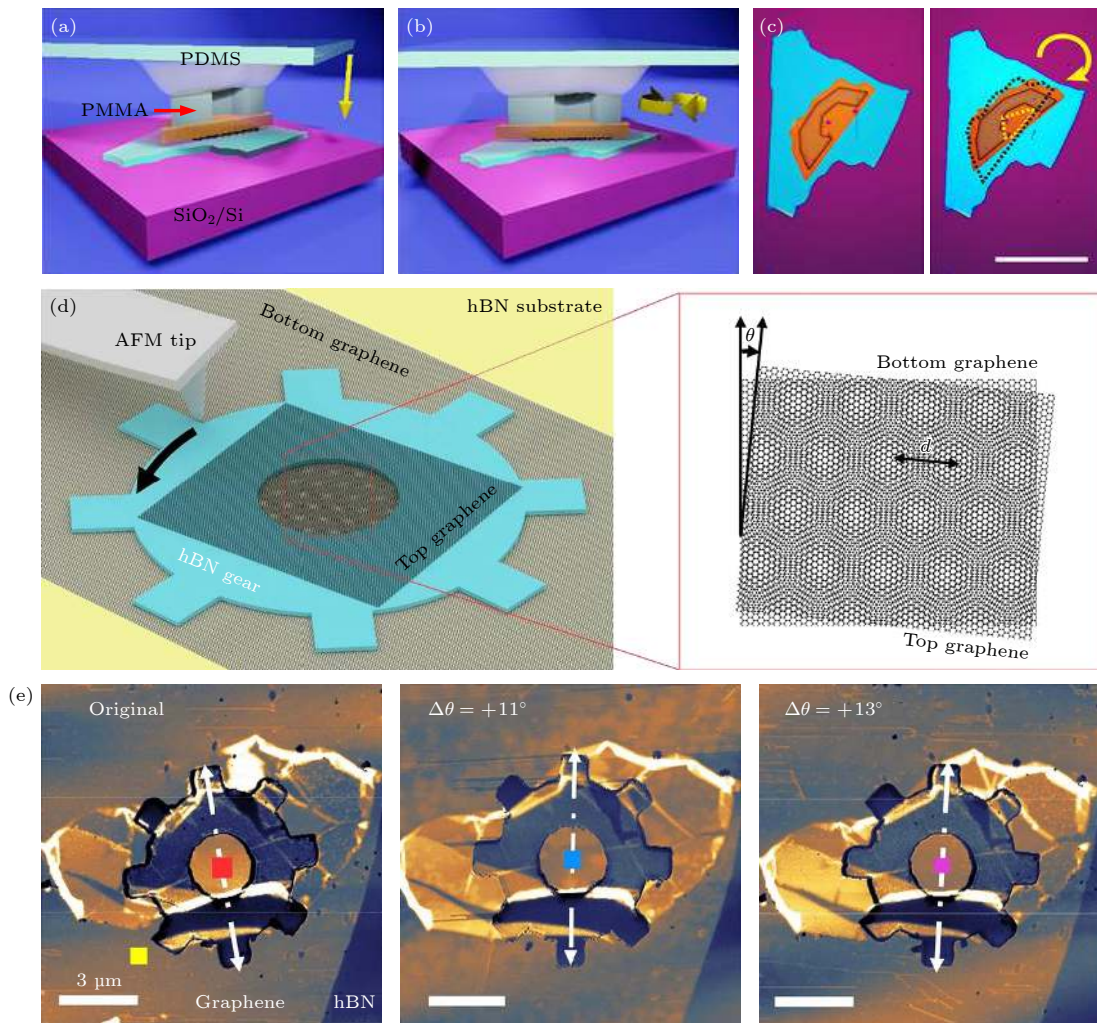


图 5 转角二维原子晶体的原位调控技术 (a)—(c) 使用 PDMS 微型半球状聚合物凝胶操纵叠层二维材料实现转角操作, (a), (b) 为方法示意图, (c) 展示了样品转角前后的光学成像, 标尺为 $40\ \mu\text{m}$ ^[23]; (d), (e) 使用 AFM 探针操纵双层二维原子晶体转角的原位调控技术, (d) 为方法示意图, (e) 为样品转角前后的 AFM 成像^[24]

Fig. 5. *In situ* manipulation of twisted two-dimensional atomic crystals. (a)—(c) Applying PDMS microdome polymer gel to manipulate the stacked two-dimensional materials to twist. (a), (b) Schematic diagrams of the method. (c) The optical images of the sample before and after twisting. Scale bar is $40\ \mu\text{m}$ ^[23]. (d), (e) *In situ* manipulation of twisted bilayer two-dimensional atomic crystals using AFM probes. (d) A schematic diagram of the method. (e) The AFM images before and after twisting^[24].

间效应和面内应变导致的有趣特性. 石墨烯是一种备受关注的二维材料, 由于其半金属特性, 以及近乎完美的二维自由电子气体, 为等离激元学及相关光电器件的发展提供了良好的平台. 目前, 单层石墨烯边界^[2,16,27]、晶界^[5]、台阶^[28]的极化激元性质已有大量的研究, 可以预见, 叠层石墨烯会提供更丰富的光电性质.

4.1 双层石墨烯中的堆叠畴壁

双层石墨烯中存在两个等价的最低能量堆叠次序 AB 和 BA^[29,30]. AB 和 BA 堆叠的双层石墨烯畴区之间的过渡区域会形成类似孤子的一维畴

壁^[31], 该畴壁是一种独特的线缺陷, 拥有受拓扑保护的谷量子霍尔绝缘体的手性边缘态^[32,33], 可形成一维谷极化导电通道, 有助于增强畴壁对于红外光的响应^[34].

Ju 等^[35]使用 s-SNOM 对双层石墨烯层堆叠畴壁进行原位成像 (如图 6(a), (b)), AFM 形貌图 (如图 6(a)) 中无法显示表面畴壁的缺陷, 而在对应的近场红外成像中 (如图 6(b)) 显示出了光电导率增强的一维亮线, 即一维畴壁. 不仅如此, 叠层石墨烯的畴壁处可以观察到较强的表面等离激元反射^[36]. 双层石墨烯中可以存在不同类型的孤子畴壁, 具体取决于孤子畴壁相对于过渡区位错矢量的

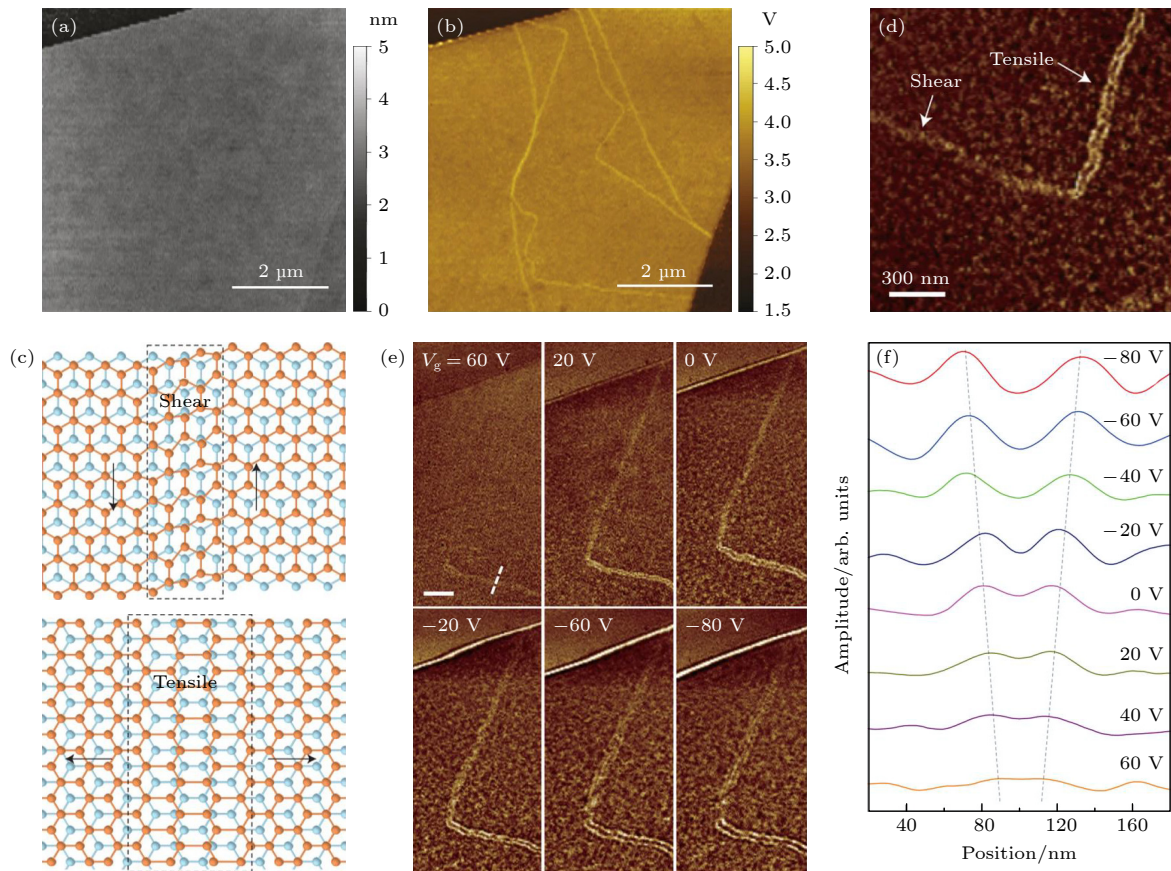


图 6 堆叠双层石墨烯中的孤子畴壁 (a) 双层石墨烯样品在 SiO_2/Si 衬底上的 AFM 形貌图, 右下角的小三角形区域对应于单层石墨烯; (b) 与图 (a) 对应的近场光学成像^[35]; (c) 剪切 (上图) 和拉伸 (下图) 畴壁孤子的示意图, 虚线勾勒出 AB 堆叠平滑过渡到 BA 堆叠的畴壁区域, 箭头表示位错方向; (d) 双层石墨烯的近场光学成像, 展示了弯曲的 L 形畴壁; (e) 不同栅极电压下双层石墨烯中剪切孤子和拉伸孤子的近场光学成像, 标尺为 300 nm; (f) 对应图 (e) 中白色虚线处的扫描线, 展示了在拉伸孤子处栅极依赖的等离激元干涉行为, 用虚线表示的两个峰对应于两条亮线, 它们的分离随着载流子密度的增大而增加^[36]

Fig. 6. Soliton domain walls in stacked bilayer graphene: (a) AFM topography of the bilayer graphene sample on SiO_2/Si substrate, the small triangular area in the lower right corner corresponds to the monolayer graphene; (b) near-field optical image corresponding to Fig. (a)^[35]; (c) schematic diagrams of shear (top) and tensile (bottom) domain wall solitons, the dashed line outlines the domain wall region where the AB stacking domain smoothly transitions to the BA stacking domain, arrows indicate dislocation directions; (d) near-field optical imaging of bilayer graphene, showing L-shaped domain walls; (e) near-field optical images of shear and tensile solitons in bilayer graphene at different gate voltages, scale bar is 300 nm; (f) corresponds to the scan line at the white dashed line in Fig. (e), showing gate-dependent plasmon interference behavior at the tensile soliton, the two peaks represented by dashed lines correspond to two bright lines, and their separation increases with increasing carrier density^[36].

方向: 平行于位错矢量的是剪切应变, 而垂直于位错矢量的是拉伸或压缩应变 (如图 6(c), (d)). 机械剥离制备的双层石墨烯中天然存在多种畴壁结构, 并且等离激元的性质表现出对畴壁孤子类型的显著差异性. 如图 6(d) 所示, 剪切型畴壁展示出单亮线特征, 拉伸型畴壁展示出双亮线特征. 剪切应变畴壁与正应变畴壁相比, 其反射相位相差 $\pi/2$; 由于剪切孤子畴壁比正应变孤子畴壁宽度更薄, 因此反射率更低^[36]. 此外, 随着栅极电压从 60 V 到 -80 V 的调控, 拉伸畴壁孤子处的双亮线特征增强且线分离增加; 对于剪切畴壁孤子, 单亮线特征变强, 并逐渐变成三亮线, 表现出畴壁处等离激元对栅极电压调控的强烈依赖性^[34,36](如图 5(e), (f)).

4.2 三层石墨烯堆叠畴

在三层及以上的多层石墨烯中, 每层石墨烯都会提供额外的自由度, 且不同堆叠顺序意味着构建新的结构对称性, 会强烈影响其光电子特性, 包括能带结构^[37–40], 自旋轨道耦合^[41], 层间屏蔽^[42]等. 对于三层石墨烯, 存在两种稳定的晶体结构: 顶层

直接位于底层之上 (表示为 Bernal 或 ABA 堆叠), 或者位于底层六边形中心的上方 (表示为菱面体或 ABC 堆叠)^[43,44]. 最近的研究表明^[37,45–47], 由于不同的层间电子相互作用和不同的晶体对称性, 这两种类型的三层石墨烯具有不同的物理特性: ABA 堆叠的三层石墨烯是一种半金属, 而 ABC 堆叠的三层石墨烯在栅极电压调控下可由半金属转变为半导体.

比较特别的是, 在三层石墨烯中, 可以同时形成 ABA 和 ABC 堆叠的两种畴区, 从而产生面内 ABA/ABC 异质结构, 两种结构过渡的畴壁区域, 由局部应变孤子构成. 与双层石墨烯类似, 三层石墨烯两种结构对应的畴区以及之间的畴壁同样无法直接通过传统的 AFM 形貌像进行分辨 (如图 7(a)). 不同的是, 由于三层石墨烯两种结构光电性质的根本差别, 光学方法包括近场光学、拉曼光谱等技术均可以实现畴区分辨^[44,48].

Jiang 等^[49]使用 s-SNOM 研究了双层和三层石墨烯的孤子畴壁. 在近场红外成像中, 双层石墨烯与三层石墨烯的畴壁在近场响应上具有明显的区别.

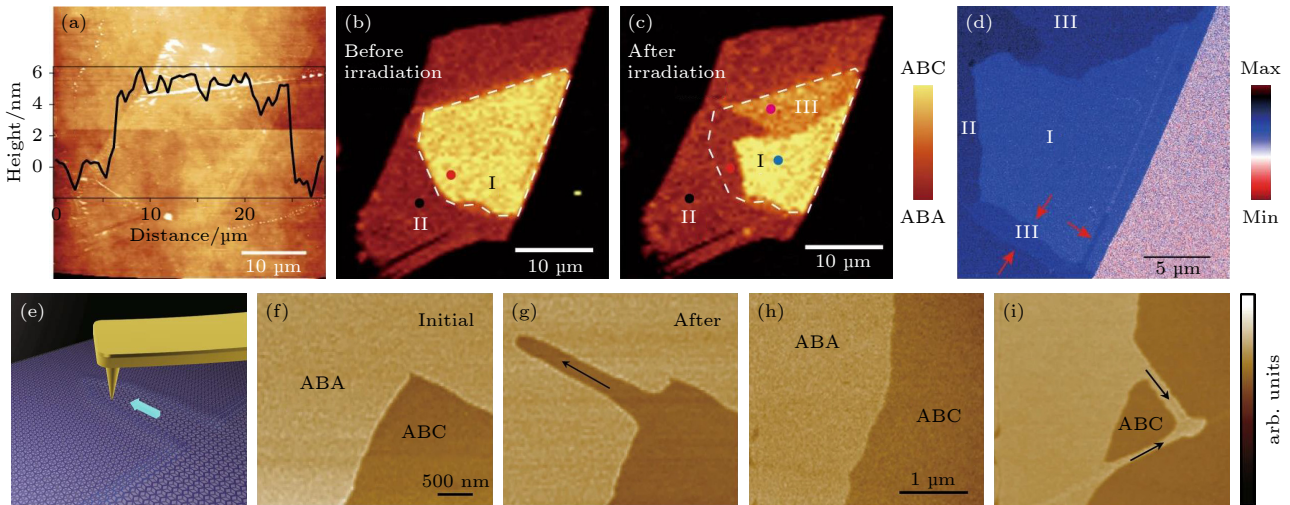


图 7 三层石墨烯的多种畴区 (a) 衬底上三层石墨烯的 AFM 形貌像和高度剖面图; (b), (c) 三层石墨烯样品激光照射处理前、后的拉曼成像; (d) 激光照射后三层石墨烯的近场光学成像, 具有不同堆叠顺序的畴区在近场光学像中显示出不同的衬度, 标记的区域 I, II 和 III 分别对应于 ABC 堆叠、ABA 堆叠和混合 ABC+ABA 堆叠畴区, 红色箭头标记了在拉曼图中未显示出的额外混合 ABC+ABA 堆叠区域^[48]; (e) 使用 AFM 接触模式对三层石墨烯畴壁进行操纵的示意图, 蓝色箭头表示尖端的移动方向; (f)–(i) 三层石墨烯的两个区域在沿着黑色箭头对畴壁进行单线扫描前后, 畴壁形态变化的近场光学成像^[49]

Fig. 7. Various domains of trilayer graphene. (a) AFM image and height profile of trilayer graphene on the substrate. (b), (c) Raman imaging of three-layer graphene samples before and after laser irradiation. (d) Near-field optical image of trilayer graphene after laser irradiation. Graphene domains with different stacking orders show different contrasts in near-field optical images. Marked regions I, II, and III correspond to ABC stacking, ABA stacking, and mixed ABC+ABA stacking domains, respectively. Red arrows highlight additional mixed ABC+ABA stacking domains not shown in the Raman map.^[48] (e) Schematic diagram of the manipulation of trilayer graphene domain walls using AFM contact mode. The blue arrow indicates the direction of movement of the tip. (f)–(i) Near-field optical images of domain walls with the reconstructed configuration before and after single-line scanning along the black arrows in trilayer graphene^[49].

在双层石墨烯中,其畴壁的近场成像为一条亮线,其分隔了双层石墨烯中 AB 和 BA 不同畴堆叠的区域,而 AB 和 BA 堆叠畴之间的红外成像衬度并无差别.与之对比,在三层石墨烯中,ABA 和 ABC 堆叠畴区具有不同的红外响应衬度.

通过体材料石墨直接机械剥离获得的三层石墨烯是以 ABA 堆叠顺序为主,也存在着少量 ABC 堆叠构型,这是因为 ABA 堆叠构型比 ABC 堆叠在热力学上更具稳定性^[48].对于存在 ABA/ABC 孤子畴壁的样品,激光可以诱导局域加热效应,从而驱动 ABC 到 ABA 的相变^[48],精确控制激光束的移动,能够重塑畴并操纵三层石墨烯中畴壁的位置和方向(如图 7(b)—(d)).不仅如此,Jiang 等^[49]结合 AFM 探针技术和 s-SNOM 成像研究发现,畴壁可以通过 AFM 尖端施加的机械应力来移动(如图 7(e)—(i)).这意味着,可以用高精度的探针通过机械作用力的方式灵活地操纵并创建定制化的畴结构.

5 转角双层二维原子晶体莫尔超晶格的近场光学表征

莫尔超晶格结构来自于在小转角堆叠的相邻原子层之间的晶格失准或失配,例如在转角的双层石墨烯^[50,51]、hBN、过渡金属硫化物^[52]等二维原子晶体中会产生周期性超晶格结构.由于应变的存在,两个叠层之间会发生重构,并以具有最低简并能的原子晶格顺序进行堆叠.在面内共存的两个畴的过渡区会产生应变孤子畴壁,这导致了二维原子晶体表面被畴壁划分为周期性的网格.不同对称性的二维原子晶体转角所获得的莫尔图案也有所不同,并且可以通过转角大小来调控.这种图案导致长程层间耦合,极大地改变了电子结构和材料特性.周期性的超晶格结构会影响其中极化激元的传播,使用 s-SNOM 是较好的研究方法.目前,已报导的相关的研究中,涉及有转角石墨烯、hBN 等二维材料.

5.1 转角石墨烯

由于单层石墨烯的六重对称性,转角双层石墨烯中会产生三角形莫尔超晶格,表面被 AB 和 BA 区域所形成的畴壁分隔^[50,51](如图 8(a)所示),周期性的网格由于晶格重构形成孤子畴壁,且转角可

以调制三角形网格的区域大小和周期^[50].2016年,Jiang 等^[36]使用 s-SNOM 观察到了双层石墨烯中三角形格子组成的孤子畴壁网络,所有畴壁都显示了单亮线的近场红外响应特征(如图 8(b)所示).2018年,Sunku 等^[50]进一步对转角双层石墨烯莫尔超晶格中的等离激元行为进行研究.当 s-SNOM 激发光波频率接近 SiO₂ 衬底的声学声子时,可观察到六重对称性的网格成像,揭示了转角导致的孤子畴壁局域光电导率的增强.研究人员还发现转角双层石墨烯中的等离激元可以被孤子阵列所散射^[34,36],与晶界类似^[5].

对于基于转角双层石墨烯的器件,经常有添加顶栅的工艺和表面保护的需要,一个可选择的方案是采用覆盖薄层 hBN 来封装,而 hBN 的介入会减少探针与石墨烯样品之间的近场光学响应强度.Luo 等^[53]制备了 hBN/转角双层石墨烯/hBN 叠层异质结构,并调谐红外光激励频率,研究发现 1500—1620 cm⁻¹ 的波数显著增强了 hBN 中声子极化激元在畴壁处的反射,是可视化内部转角石墨烯的莫尔图案的最佳频率范围.在不同的红外光频率下,该叠层异质结构表现出不同的极化激元特性,其近场红外成像结果如图 8(c)—(h)所示.

双层石墨烯莫尔周期性结构也可以用近场光电流表征方法来可视化.Hesp 等^[54]和 Sunku 等^[55]分别实现了莫尔超晶格内部的近场光电流成像,该光电响应来自于近场光诱导莫尔超晶格精细结构中产生的光热电效应,其实验结果如图 8(i)—(k)所示.

此外,转角双层石墨烯不仅能形成周期性莫尔超晶格结构,而且转角依赖的层间电子耦合能显著影响其等离激元的性质^[56–58].Hu 等^[57]通过扫描近场光学显微镜对转角双层石墨烯中的等离激元行为进行了研究,其显微成像显示这些等离激元对转角有明显的依赖关系.在较小的转角下,其等离激元波长与单层石墨烯相当.在较大的转角下,等离激元波长显著增大,阻尼明显降低.为了理解这种行为,研究人员通过数值模拟发现,转角的单层石墨烯在狄拉克线性区,其莫尔超晶格势和层间耦合对狄拉克费米子有调制作用,使费米速度发生重整化,从而导致了等离激元波长对转角的依赖性.

5.2 转角六方氮化硼

不仅仅是转角的双层石墨烯,其他二维原子晶

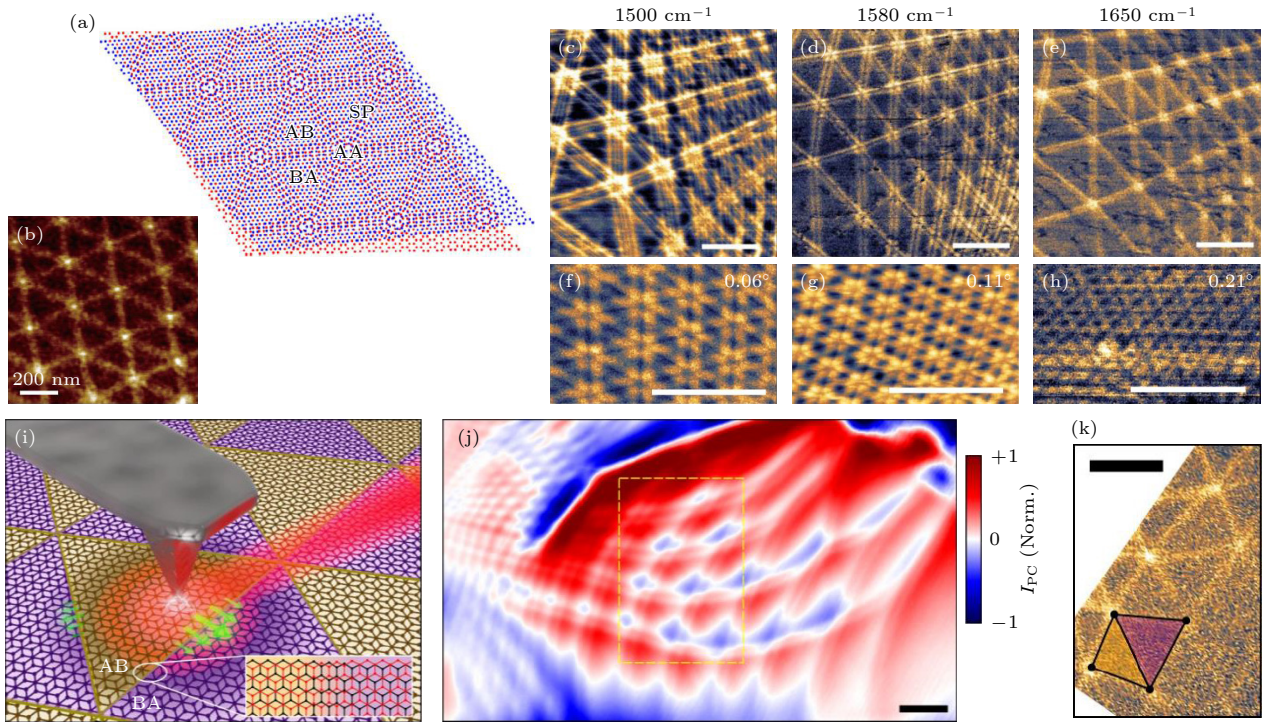


图 8 转角双层石墨烯的莫尔超晶格网络 (a) 转角双层石墨烯不同堆叠构型, 分别用 AB, BA, AA 和 SP 标记; (b) 转角双层石墨烯周期性三角形孤子畴壁的 near 场光学成像^[36]; (c)–(e) 在不同激发频率下, hBN 封装的转角双层石墨烯莫尔图案的 near 场光学成像, 转角为 -0.05° ; (f)–(h) 在激励频率 $\omega = 1560 \text{ cm}^{-1}$ 下, 分别为 0.06° , 0.11° 和 0.21° 的不同转角的 near 场光学成像, 标尺为 500 nm ^[53]; (i) 转角双层石墨烯 near 场光电流成像的实验设置示意图, 叠层石墨烯中标记有 AB 和 BA 畴区; (j) 转角双层石墨烯的光电流成像; (k) 对应于图 (j) 中的黄色虚线矩形的 near 场光学相位图, 标尺为 500 nm ^[54]

Fig. 8. Twisted bilayer graphene superlattice network. (a) Schematic diagram of twisted bilayer graphene showing different stacking configurations. They are marked with AB, BA, AA and SP respectively. (b) Near-field optical images of the periodic triangular soliton domain-wall lattice of twisted bilayer graphene. ^[36] (c)–(e) Near-field optical images of the normalized amplitude showing moiré pattern in buried twisted bilayer graphene encapsulated with hBN at different excitation frequencies. The twist angle is -0.05° . (f)–(h) Near-field optical images showing different twist angles of 0.06° , 0.11° and 0.21° at excitation frequency $\omega = 1560 \text{ cm}^{-1}$. Scale bars are 500 nm . ^[53] (i) Schematic diagram of the experimental setup for near-field photocurrent images of twisted bilayer graphene with AB and BA labels in stacked graphene layers. (j) Photocurrent map of twisted bilayer graphene. (k) Near-field optical phase image corresponding to the yellow dashed rectangle in Fig. (j). Scale bar is 500 nm ^[54].

体如 hBN 中的层间原子平面失配也会形成莫尔超晶格. Ni 等^[59] 使用 s-SNOM 成功实现了 hBN 晶体亚表面孤子超晶格的可视化. 其超晶格形成于 hBN 晶体表面下方约 15 nm , near 场光学成像显示为六边形网络 (如图 9(a)). 该 hBN 畴区和畴壁对红外光频率有着不同的响应, 反映了系统内部不同的弹性应变分布 (如图 9(b)). 由于这种莫尔超晶格结构产生于较厚的薄片状晶体的亚表面界面处, 其构型与原子级的薄层转角 hBN 有较大差别. 原子级的薄层转角 hBN 与石墨烯类似, Bernal 堆叠构型的 hBN 表面同样会被分割为 AB 和 BA 的周期性三角形网格畴区. 为了研究其声子极化激元性质, Moore 等^[60] 在石墨衬底上, 通过机械剥离的方法构建了原子级厚的转角 hBN 样品. 该研究团队分别使用压电响应显微术 (piezoresponse force

microscopy, PFM)^[61,62] 和 s-SNOM 对其进行成像, 两者均清晰的显示了 AB 和 BA 的三角形畴区 (如图 9(c)–(j)). near 场光学成像 (如图 9(e)–(j)) 显示出 AB、BA、畴壁鞍点 (SP, 三角形边)、三角形顶点 AA 各区域不同的衬度, 其衬度归因于转角 hBN 面内畴结构各区域的声子极化激元的红外光频率依赖性, 反映了其面内横光学支 (波数为 $1360\text{--}1380 \text{ cm}^{-1}$) 声子共振系统的空间分布. 图 9(k)–(m) 展示了 hBN 不同堆叠区域的介电函数实部 (图 9(k)) 和虚部 (图 9(l)) 的频率依赖性, 显示出各区域的横光学支声子频率偏移 (具体数据见图 9(m)). 该团队通过实验和第一性原理计算进一步研究显示, 面内应变不足以引起可分辨的横光学支声子频率的差异, 这种差异主要来自于 hBN 与其公度的石墨衬底之间极化激元耦合的贡献.

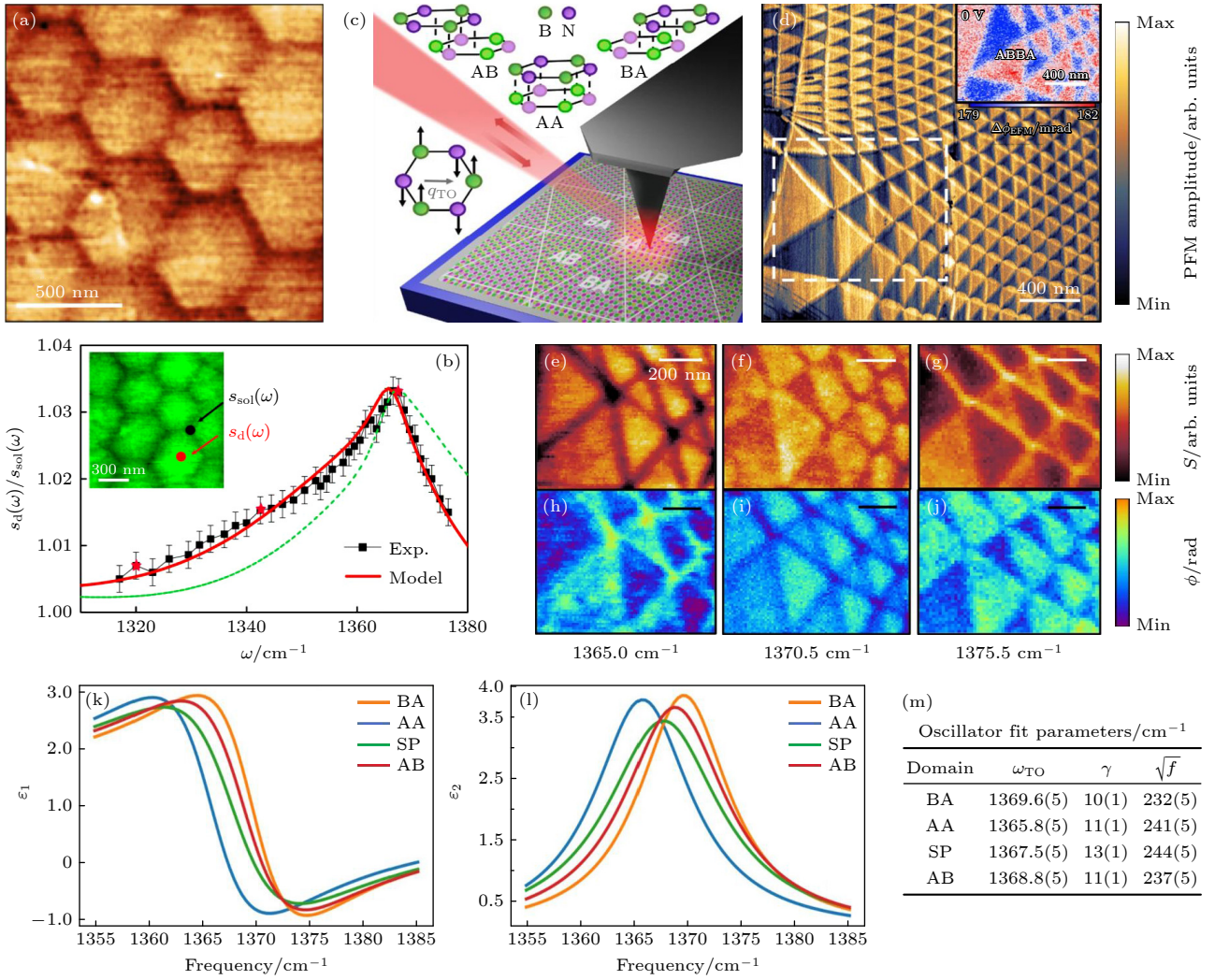


图9 转角hBN超晶格网络 (a) 频率为 1368 cm^{-1} 处的转角hBN畴结构的近场光学成像; (b) 转角hBN声子剩余极化带的近场光学信号的频率依赖关系图, 纵坐标表示畴区和畴壁的信号比值, 插图显示了对应的近场光学像^[59]; (c) 转角hBN在石墨/SiO₂/Si衬底上的近场成像示意图, 该图展示了可能的堆叠构型(AA, AB, BA); (d) 转角hBN的压电响应显微术(PFM)成像, 插图显示了直流静电力显微术(DC-EFM)成像; (e)–(j) 在3个选定频率下拍摄的转角hBN的近场光学振幅和相位的图像, 对应图(d)中白色虚线矩形显示的区域, 所有实验都是在横向光学(TO)声子调谐频率附近进行的; (k), (l) 不同堆叠构型的介电函数对频率的依赖关系; (m) 相关拟合参数, 反映不同堆叠构型的频率偏移^[60]

Fig. 9. Twisted hBN superlattice networks. (a) Near-field optical image of the twisted hBN domain structure at a frequency of 1368 cm^{-1} . (b) Frequency-dependent plot of the near-field optical signal of the phonon reststrahlen band of the twisted hBN. The y -axis represents the signal ratio of the domain region and the domain wall. The inset shows the corresponding near-field optical image.^[59] (c) Schematic diagram of near-field optical imaging of twisted hBN on a graphite/SiO₂/Si substrate. The possible stacking configurations are drawn above (AA, AB, BA). (d) Piezo-force microscopy (PFM) image of twisted hBN. The inset shows DC electrical force microscopy (DC-EFM) imaging. (e)–(j) Images of the near-field optical amplitude and phase for twisted hBN at three selected frequencies, corresponding to the area marked with white dashed rectangle in Fig. (d). All experiments are performed at the transverse optical (TO) phonon frequency. (k), (l) Frequency dependence of the dielectric functions of different stacking configurations. (m) The fitting parameters, which reflect the frequency shift of the different stacking configurations^[60].

石墨烯与hBN有相近的晶格参数使其叠层转角结构也可以产生莫尔超晶格^[63,64], 堆叠的石墨烯/hBN异质结构在超晶格区域边界处获得了卫星亚狄拉克锥(satellite sub-Dirac cones), 导致许多有趣的新行为^[3,65–67]. Ni等^[68]利用s-SNOM研究了石墨烯/hBN异质结构中的表面等离激元性质. 该

异质结样品的制备方法是在hBN基底上使用无催化CVD外延生长获得薄层石墨烯^[69], 在石墨烯/hBN叠层样品中可同时产生纳米级莫尔超晶格畴区与普通(无超晶格效应)石墨烯畴区, 且这两种畴区直接相邻. 近场光学成像显示莫尔超晶格畴区比普通石墨烯畴区有更强的近场光学响应. 为理解

这种行为, 该项研究通过第一性原理计算得到了石墨烯/氮化硼莫尔超晶格结构的能带结构, 与经典的狄拉克锥能带相比, 其能带具有精细的子带结构. 这些劈裂的子带结构打开了额外的光吸收通道, 从而增大材料的光电导率, 最终导致莫尔超晶格畴区近场光学信号的增强. 此外, 该项研究还发现两种畴区的边界会发生与晶界类似的等离激元反射现象, 畴壁两侧具有相近的波长, 但莫尔超晶格畴区一侧等离激元表现出更高的阻尼.

6 转角二维原子晶体的拓扑极化激元

根据极化激元等能线(面)的几何形状, 它们一般可以分为椭圆型和双曲型两类. 当材料的介电张量分量 $[\epsilon_{xx}, \epsilon_{yy}, \epsilon_{zz}]$ 出现正负异号时, 就能支持双曲型极化激元的传播. 双曲极化表面具有开放的双曲色散、极大的光学态密度和特定的极化激元传播方向, 这产生了诸多不寻常的现象, 如负折射、自发辐射增强等. 传统上双曲型材料主要通过人工构筑金属阵列图案组成的超材料来实现, 而一些极端各向异性的天然二维原子晶体, 其特定取向也能表现出负介电函数, 从而支持双曲型极化激元的传播. 这些天然二维原子晶体兼具光电可调谐的能力和原子级平整的表面, 在优化纳米尺度加工并发展双曲超材料方面更具优势. 目前, 在范德瓦耳斯二维原子晶体中已报道支持双曲极化激元的包括 α - MoO_3 ^[70,71]、 α - V_2O_5 ^[72] (面内声子极化激元)、 hBN ^[73,74] (面外声子极化激元)、 WTe_2 ^[75] (面内等离激元) 模式、 WSe_2 ^[76] (面外激子极化激元)、黑磷^[77,78] (理论预言面内等离激元和激子极化激元) 等, 进一步对双曲型二维原子晶体进行叠层转角操作, 可获得其极化激元的新特性, 如拓扑极化激元.

6.1 转角双层 α - MoO_3 的“光子魔角”

2018年, Zheng等^[70]和Ma等^[71]分别对 α - MoO_3 范德瓦耳斯二维原子晶体的声子极化激元进行了近场光学研究, 结果表明, 对于薄层 α - MoO_3 在其剩余极化带内, 介电常数的实部沿[100]方向(x 轴)为负, 但沿[001] (y 轴)方向为正(晶体学取向定义如图10(a)所示), 这种极端的各向异性使其面内声子极化激元具有双曲线响应^[6,74,79].

然而, 如何调控二维声子极化激元的拓扑转变是该研究方向更加关心的问题. 2020年, Hu等^[80]

利用双层旋转的石墨烯纳米光栅阵列构成了双曲超表面. 通过旋转角度的变化实现了可控的光学色散关系. 在该体系中, 当上下两层石墨烯纳米光栅阵列被旋转到特定角度时, 会形成两个近乎平行的色散曲线, 进而形成一个低损耗宽波段的传输渠道.

同年, Hu等^[81]又通过转角两层 α - MoO_3 实现了对声子极化激元色散的精确控制. 使用s-SNOM进行实空间成像研究发现, 这种声子极化激元的色散轮廓可以通过转角调控实现从双曲线(开放)到椭圆(闭合)的拓扑转变. 这种转变可由一个拓扑量来标定, 即每层的色散曲线在倒空间中的反交叉点(N_{ACP})的数量. 当 N_{ACP} 为2时, 色散是双曲线的; 当其为4时, 色散是椭圆的. N_{ACP} 变化的临界转角被称为“光子魔角 (photonic magic twist angle)”. 声子极化激元拓扑结构从封闭变为开放时, 可产生低损耗的定向传输通道. 在同一时期, Chen等^[82]和Zheng等^[83]两个团队对这一现象分别进行了独立研究, 并给出了类似的结果, 对应的实验结果如图10(b)–(q)所示.

考虑到石墨烯的能带可调控的特性, 通过石墨烯界面工程构建二维堆叠异质结构是一种动态调控层间耦合以实现光学拓扑转变操纵的新策略. 2022年, Zeng等^[84]通过模拟计算发现在石墨烯和 α - MoO_3 堆叠的异质界面结构中, 调节石墨烯费米能级和 α - MoO_3 的厚度分别可以实现杂化极化激元的椭圆和双曲线之间的转变. 同年, Hu等^[85]在实验上实现了通过改变费米能来调控“石墨烯/ α - MoO_3 /衬底”结构的极化激元的拓扑转变. 该团队还发现, 在红外光 910 cm^{-1} 的波数下, 石墨烯/ α - MoO_3 结构在Au衬底上比在 SiO_2 衬底上更容易实现调控, 即更低的费米能即可实现双曲线到椭圆的极化激元的转变.

6.2 转角三层黑磷的双曲极化表面

α - MoO_3 成功演示了天然二维原子晶体中支持双曲声子极化激元, 并且双层转角可以调控极化激元从双曲向椭圆的拓扑转变, 致使研究人员开始寻找更多介电函数各向异性的天然二维原子晶体^[71,86]. 黑磷具有范德瓦耳斯层状结构, 其二维原子晶体具有很强的面内各向异性^[87–92], 并且被预言有希望支持双曲型等离激元和激子极化激元^[70,71]. 目前已报道关于黑磷极化激元包括薄层、叠层及转角的研究大多是基于理论和模拟的结果.

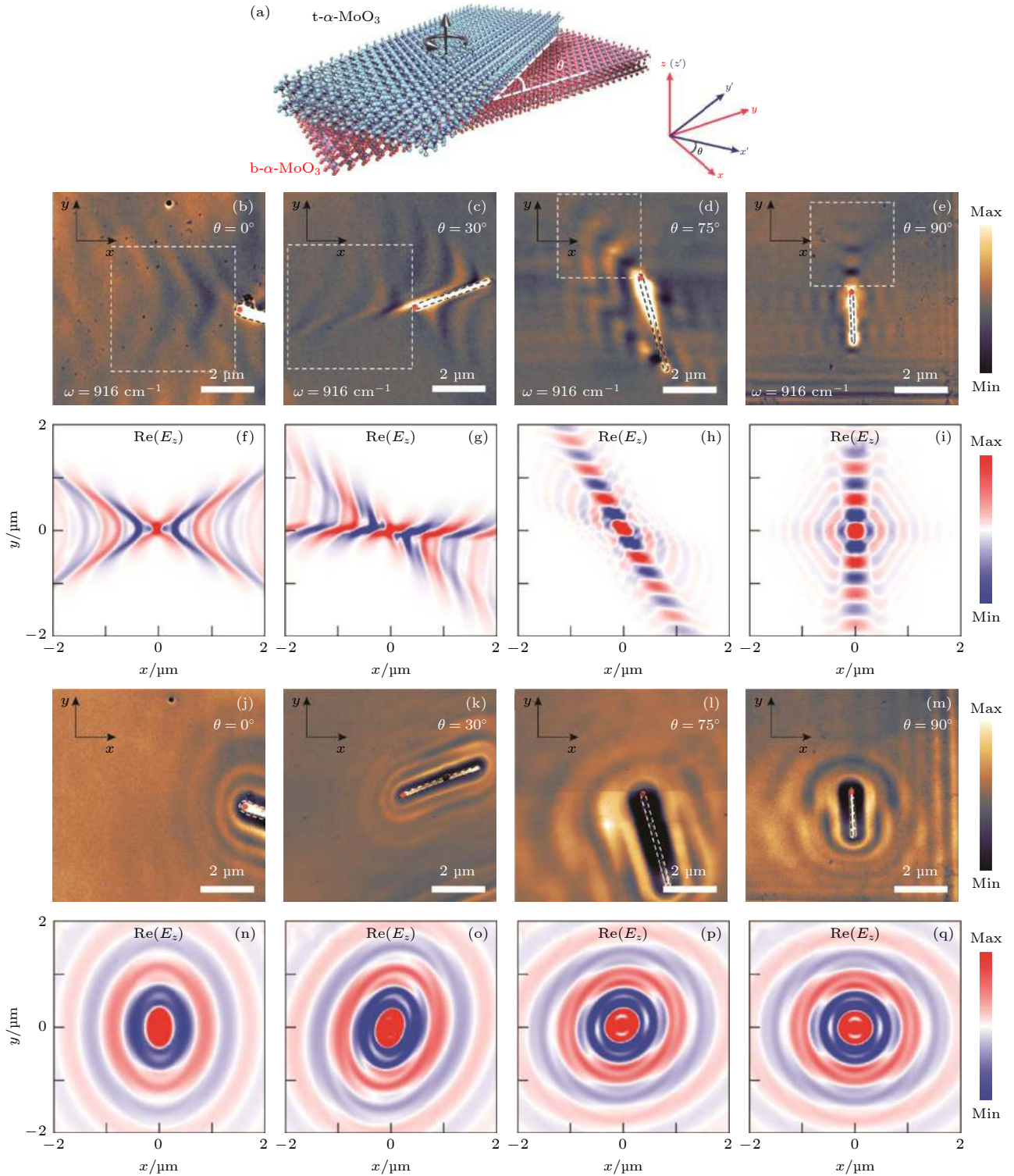


图 10 转角双层 α - MoO_3 的声子极化激元的拓扑转变^[83] (a) 转角双层 α - MoO_3 示意图. 底层 α - MoO_3 的 $[100]$ 和 $[001]$ 方向分别定义为 x 和 y 轴, 转角 $\Delta\theta$ 定义为顶层 α - MoO_3 相对于底层逆时针旋转角度; (b)–(e) 和 (j)–(m) 显示了真实空间近场光学成像, 反映了声子极化激元色散作为转角的函数的拓扑性质, 频率为 916 cm^{-1} (图 (b)–(e) 和 986 cm^{-1} (图 (j)–(m)); (f)–(i) 和 (n)–(q) 对应计算的电场分布 z 分量的实数部分, $\text{Re}(E_z)$

Fig. 10. Topological transition of phonon polaritons in the twisted bilayer α - MoO_3 .^[83] (a) Schematic diagram of the twisted bilayer α - MoO_3 . The $[100]$ and $[001]$ directions of the bottom α - MoO_3 are defined as the x and y axes, respectively. The twist angle $\Delta\theta$ is defined as the counterclockwise rotation angle of the top layer α - MoO_3 relative to the bottom layer. (b)–(e) and (j)–(m) Near-field optical images reflecting the topological properties of the phonon polariton dispersion as a function of the twist angle at a frequency of 916 cm^{-1} (Fig. (b)–(e) and 986 cm^{-1} (Fig. (j)–(m)); (f)–(i) and (n)–(q) corresponds to calculated real parts of the z -components of the electric field distributions, $\text{Re}(E_z)$.

Zheng 等^[93]用模拟的方法演示了三层黑磷通过转角来调控其极化激元双曲线的形态. 转角双层双曲材料实现从开放(双曲型)到闭合(椭圆型)的拓扑转变必须满足单层大于 45° 的开放角的条件. 当开放角小于 45° 时, 无论转角如何, 都不能实现闭合拓扑. 通过三层堆叠就可以使从开到闭的拓扑转变条件降低到开放角大于 30° . 例如, 单片黑磷双曲线在 1900 cm^{-1} 处的开放角为 38.2° , 在该频率下, 由于开放角小于 45° , 开放到关闭的拓扑转变无法实现, 然而, 通过引入第三层黑磷可以激活这种拓扑转变^[93]. 多层堆叠可以在更多的频率范围里灵活地控制色散, 从而扩展了从开到关转换控制的可用带宽.

7 转角石墨烯的手性等离极化激元

当物体的镜像并不等于其自身时, 它就具有手性. 手性材料在偏振光学、立体化学和自旋电子学等领域有着重要应用. 扭转角为 θ 与 $-\theta$ 的双层石墨烯并不具有完全相同的结构, 转角会引起整体反演对称性的破缺, 从而产生手性. 转角双层石墨烯布里渊区中 K 和 K' 谷处能带具有方向相反且非零的 Berry 曲率, 当载流子处于该 (K 或 K') 能带中时会获得一个非经典的横向速度. 谷极化会产生非零 Berry 通量, 从而引起无磁场的手性等离激元激发^[10,94]. 早在 2016 年, Song 等^[94]预言了在间隙狄拉克材料 (gapped Dirac materials) 中, 净 Berry 曲率可导致手性等离激元模式. 2018 年, Stauber 等^[95]在理论上研究了转角双层石墨烯的等离激元模式以及与纵向磁矩相关的手性特征. 2020 年, Lin 等^[96]在考虑了转角双层石墨烯间量子耦合条件下, 求解了其手性等离激元的全麦克斯韦方程的一般解, 发现转角双层石墨烯可以等效为一个同时具有手性、磁学、电学表面电导率的手性超表面. 此后, Stauber 等^[97]和 Margetis 等^[98]也分别对转角双层石墨烯的手性等离激元进行研究, 结果表明转角双层石墨烯的手性等离激元可以通过表观纵向磁矩来反映, 且与远场圆偏振光相比, 等离激元可增强其近场手性.

在实验方面, Kim 等^[99]将生长的单层石墨烯单晶薄膜以扭转角 θ 堆叠制备手性转角双层石墨烯, 并首次通过圆二色谱表征其手性特征, 获得了较高的椭圆度值 ($6.5^\circ/\mu\text{m}$). Huang 等^[10]在具有

莫尔纹超晶格的转角双层石墨烯中, 采用无磁场的圆极化红外光谱观察到了手性等离激元模式. 在这项研究中, 通过构建螺旋状石墨烯等离激元谐振器以及光谱特征峰比对的策略, 观测到了转角双层石墨烯中的手性等离激元对应的特征分裂吸收峰, 以及手性等离激元对光强度和电子填充的依赖性. 手性等离激元模式展示了小角度下转角双层石墨烯中一种新的量子光学特性.

8 总结与展望

本文从扫描近场光学显微技术、叠层/转角二维原子晶体样品的制备、以及各种光学结构和极化激元性质等方面介绍了极化激元纳米光子学领域的重要进展. 这些研究进展为二维光电子学的发展带来新的可能, 同时为未来高性能纳米光子器件的研制提供基础和丰富的材料储备.

石墨烯是研究二维等离激元和用于调控叠层异质材料极化激元的重要材料, 也是本文重点介绍的材料. 石墨烯具有很高的等离激元波长压缩比, 是传统金属的数十倍, 这使得石墨烯具有制备纳米尺度光子器件的巨大潜力, 如纳米光波导、全光逻辑器件等. 转角石墨烯结构中出现的莫尔超晶格和周期性孤子网络图案, 有望成为构筑无光刻二维等离激元光子晶体的重要手段; 在三层石墨烯中, ABA 和 ABC 堆叠的结构可以组成金属-半导体面内异质结, 且异质界面极易操控, 可为纳米光子器件的发展提供支持. 另一方面, 石墨烯具有非常高的载流子迁移率和远低于金属的载流子浓度, 使得其等离激元可以实现从近红外到太赫兹波段极宽频段的调控. 在石墨烯/ $\alpha\text{-MoO}_3$ 异质结构中, 石墨烯可控的费米能, 更易于调控其极化激元的拓扑转变. 除此之外, 转角石墨烯手性等离激元、转角 $\alpha\text{-MoO}_3$ 的双曲极化激元的拓扑转变等奇特物理特性也为微纳光电器件设计带来了新的机遇. 比如, 利用手性特性制备无磁场的法拉第旋转器、单向波导等新型光子器件, 或利用超表面特性开展变换光学理论研究以及制作光学隐身衣、超透镜等装置.

除了本文涉及的石墨烯、hBN、 $\alpha\text{-MoO}_3$ 、黑磷外, 对于其他二维材料, 如过渡金属硫族化合物等, 在不同堆叠/转角下也有望观测到新的极化激元特性. 例如, 过渡金属硫族化合物异质结中存在莫尔

激子以及维格纳晶体等行^[100–102], 在其中可能涌现出莫尔激子极化激元; 在魔角石墨烯中发现了超导现象^[103–106], 可能存在库珀对极化激元; 对于磁性二维材料, 可存在磁振子极化激元等. 这些材料通过不同的堆叠次序以及不同转角的组合, 有望产生更丰富的极化激元新模式及耦合行为, 并涌现出新的光电现象. 总之, 转角/叠层二维原子晶体作为一类支持极化激元的天然光子晶体, 为纳米光子学领域研究提供了新的平台, 并将继续成为未来材料科学与物理学最前沿的研究热点.

参考文献

- [1] Basov D N, Fogler M M, Garcia de Abajo F J 2016 *Science* **354** aag1192
- [2] 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, Castro Neto A H, Lau C N, Keilmann F, Basov D N 2012 *Nature* **487** 82
- [3] Shi Z, Jin C, Yang W, Ju L, Horng J, Lu X, Bechtel H A, Martin M C, Fu D, Wu J, Watanabe K, Taniguchi T, Zhang Y, Bai X, Wang E, Zhang G, Wang F 2014 *Nat. Phys.* **10** 743
- [4] Chen G R, Sharpe A L, Gallagher P, Rosen I T, Fox E J, Jiang L L, Lyu B S, Li H Y, Watanabe K, Taniguchi T, Jung J, Shi Z W, Goldhaber-Gordon D, Zhang Y B, Wang F 2019 *Nature* **572** 215
- [5] Fei Z, Rodin A S, Gannett W, Dai S, Regan W, Wagner M, Liu M K, McLeod A S, Dominguez G, Thiemens M, Castro Neto A H, Keilmann F, Zettl A, Hillenbrand R, Fogler M M, Basov D N 2013 *Nat. Nanotechnol.* **8** 821
- [6] Dai S, Fei Z, Ma Q, Rodin A S, Wagner M, McLeod A S, Liu M K, Gannett W, Regan W, Watanabe K, Taniguchi T, Thiemens M, Dominguez G, Castro Neto A H, Zettl A, Keilmann F, Jarillo-Herrero P, Fogler M M, Basov D N 2014 *Science* **343** 1125
- [7] Luan Y L, Zobeiri H, Wang X W, Sutter E, Sutter P, Fei Z 2022 *Nano Lett.* **22** 1497
- [8] Hu F, Luan Y, Scott M E, Yan J, Mandrus D G, Xu X, Fei Z 2017 *Nat. Photonics* **11** 356
- [9] Li N, Guo X, Yang X, Qi R, Qiao T, Li Y, Shi R, Li Y, Liu K, Xu Z, Liu L, Garcia de Abajo F J, Dai Q, Wang E G, Gao P 2021 *Nat. Mater.* **20** 43
- [10] Huang T, Tu X, Shen C, Zheng B, Wang J, Wang H, Khaliji K, Park S H, Liu Z, Yang T, Zhang Z, Shao L, Li X, Low T, Shi Y, Wang X 2022 *Nature* **605** 63
- [11] Wirth K G, Linnenbank H, Steinle T, Banszerus L, Icking E, Stampfer C, Giessen H, Taubner T 2021 *ACS Photonics* **8** 418
- [12] Wang S, Zhao S, Shi Z, Wu F, Zhao Z, Jiang L, Watanabe K, Taniguchi T, Zettl A, Zhou C, Wang F 2020 *Nat. Mater.* **19** 986
- [13] Shi Z, Hong X, Bechtel H A, Zeng B, Martin M C, Watanabe K, Taniguchi T, Shen Y-R, Wang F 2015 *Nat. Photonics* **9** 515
- [14] Hillenbrand R, Knoll B, Keilmann F 2001 *J. Microsc.* **202** 77
- [15] Taubner T, Hillenbrand R, Keilmann F 2003 *J. Microsc.* **210** 311
- [16] Chen J, Badioli M, Alonso-Gonzalez P, Thongrattanasiri S, Huth F, Osmond J, Spasenovic M, Centeno A, Pesquera A, Godignon P, Elorza A Z, Camara N, Garcia de Abajo F J, Hillenbrand R, Koppens F H 2012 *Nature* **487** 77
- [17] Kim K, Yankowitz M, Fallahazad B, Kang S, Movva H C, Huang S, Larentis S, Corbet C M, Taniguchi T, Watanabe K, Banerjee S K, LeRoy B J, Tutuc E 2016 *Nano Lett.* **16** 1989
- [18] Wang B, Huang M, Kim N Y, Cunniff B V, Huang Y, Qu D S, Chen X J, Jin S, Biswal M, Zhang X, Lee S H, Lim H, Yoo W J, Lee Z, Ruoff R S 2017 *Nano Lett.* **17** 1467
- [19] Liu C, Li Z, Qiao R, Wang Q, Zhang Z, Liu F, Zhou Z, Shang N, Fang H, Wang M, Liu Z, Feng Z, Cheng Y, Wu H, Gong D, Liu S, Zhang Z, Zou D, Fu Y, He J, Hong H, Wu M, Gao P, Tan P H, Wang X, Yu D, Wang E, Wang Z J, Liu K 2022 *Nat. Mater.* **21** 1263
- [20] Ni Z, Liu L, Wang Y, Zheng Z, Li L J, Yu T, Shen Z 2009 *Phys. Rev. B* **80** 125404
- [21] Wakafuji Y, Moriya R, Masubuchi S, Watanabe K, Taniguchi T, Machida T 2020 *Nano Lett.* **20** 2486
- [22] Chen H, Zhang X L, Zhang Y Y, Wang D F, Bao D L, Que Y D, Xiao W D, Du S X, Ouyang M, Pantelides S T, Gao H J 2019 *Science* **365** 1036
- [23] Yang Y, Li J, Yin J, Xu S, Mullan C, Taniguchi T, Watanabe K, Geim A K, Novoselov K S, Mishchenko A 2020 *Sci. Adv.* **6** eabd3655
- [24] Hu C, Wu T, Huang X, Dong Y, Chen J, Zhang Z, Lyu B, Ma S, Watanabe K, Taniguchi T, Xie G, Li X, Liang Q, Shi Z 2022 *Sci. Rep.* **12** 204
- [25] Song Y, Mandelli D, Hod O, Urbakh M, Ma M, Zheng Q 2018 *Nat. Mater.* **17** 894
- [26] Liao M, Nicolini P, Du L, Yuan J, Wang S, Yu H, Tang J, Cheng P, Watanabe K, Taniguchi T, Gu L, Claerbout V E P, Silva A, Kramer D, Polcar T, Yang R, Shi D, Zhang G 2022 *Nat. Mater.* **21** 47
- [27] Duan J, Chen R, Cheng Y, Yang T, Zhai F, Dai Q, Chen J 2018 *Adv. Mater.* **30** e1800367
- [28] Chen J, Nesterov M L, Nikitin A Y, Thongrattanasiri S, Alonso-Gonzalez P, Slipchenko T M, Speck F, Ostler M, Seyller T, Crassee I, Koppens F H, Martin-Moreno L, Garcia de Abajo F J, Kuzmenko A B, Hillenbrand R 2013 *Nano Lett.* **13** 6210
- [29] Alden J S, Tsen A W, Huang P Y, Hovden R, Brown L, Park J, Muller D A, McEuen P L 2013 *Proc. Natl. Acad. Sci. U S A* **110** 11256
- [30] Butz B, Dolle C, Niekief F, Weber K, Waldmann D, Weber H B, Meyer B, Spiecker E 2014 *Nature* **505** 533
- [31] Lin J, Fang W, Zhou W, Lupini A R, Idrobo J C, Kong J, Pennycook S J, Pantelides S T 2013 *Nano Lett.* **13** 3262
- [32] Martin I, Blanter Y M, Morpurgo A F 2008 *Phys. Rev. Lett.* **100** 036804
- [33] Zhang F, MacDonald A H, Mele E J 2013 *Proc. Natl. Acad. Sci. U S A* **110** 10546
- [34] 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
- [35] Ju L, Shi Z, Nair N, Lv Y, Jin C, Velasco J, Jr., Ojeda-Aristizabal C, Bechtel H A, Martin M C, Zettl A, Analytis J, Wang F 2015 *Nature* **520** 650
- [36] 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

- [37] Aoki M, Amawashi H 2007 *Solid State Commun.* **142** 123
- [38] Guinea F, Castro Neto A H, Peres N M R 2006 *Phys. Rev. B* **73** 245426
- [39] Avetisyan A A, Partoens B, Peeters F M 2009 *Phys. Rev. B* **80** 195401
- [40] Latil S, Henrard L 2006 *Phys. Rev. Lett.* **97** 036803
- [41] Otani M, Koshino M, Takagi Y, Okada S 2010 *Phys. Rev. B* **81** 161403(R)
- [42] Koshino M 2010 *Phys. Rev. B* **81** 125304
- [43] Warner J H, Mukai M, Kirkland A I 2012 *ACS Nano* **6** 5680
- [44] Lui C H, Li Z, Chen Z, Klimov P V, Brus L E, Heinz T F 2011 *Nano Lett.* **11** 164
- [45] Lui C H, Li Z, Mak K F, Cappelluti E, Heinz T F 2011 *Nat. Phys.* **7** 944
- [46] Bao W, Jing L, Velasco J, Lee Y, Liu G, Tran D, Standley B, Aykol M, Cronin S B, Smirnov D, Koshino M, McCann E, Bockrath M, Lau C N 2011 *Nat. Phys.* **7** 948
- [47] Zou K, Zhang F, Clapp C, MacDonald A H, Zhu J 2013 *Nano Lett.* **13** 369
- [48] Zhang J, Han J, Peng G, Yang X, Yuan X, Li Y, Chen J, Xu W, Liu K, Zhu Z, Cao W, Han Z, Dai J, Zhu M, Qin S, Novoselov K S 2020 *Light Sci. Appl.* **9** 174
- [49] Jiang L, Wang S, Shi Z, Jin C, Utama M I B, Zhao S, Shen Y R, Gao H J, Zhang G, Wang F 2018 *Nat. Nanotechnol.* **13** 204
- [50] 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
- [51] Choi Y, Kemmer J, Peng Y, Thomson A, Arora H, Polski R, Zhang Y, Ren H, Alicea J, Refael G, von Oppen F, Watanabe K, Taniguchi T, Nadj-Perge S 2019 *Nat. Phys.* **15** 1174
- [52] Rosenberger M R, Chuang H J, Phillips M, Oleshko V P, McCreary K M, Sivaram S V, Hellberg C S, Jonker B T 2020 *ACS Nano* **14** 4550
- [53] Luo Y, Engelke R, Mattheakis M, Tamagnone M, Carr S, Watanabe K, Taniguchi T, Kaxiras E, Kim P, Wilson W L 2020 *Nat. Commun.* **11** 4209
- [54] Hesp N C H, Torre I, Barcons-Ruiz D, Herzig Sheinfux H, Watanabe K, Taniguchi T, Krishna Kumar R, Koppens F H L 2021 *Nat. Commun.* **12** 1640
- [55] Sunku S S, Halbertal D, Stauber T, Chen S, McLeod A S, Rikhter A, Berkowitz M E, Lo C F B, Gonzalez-Acevedo D E, Hone J C, Dean C R, Fogler M M, Basov D N 2021 *Nat. Commun.* **12** 1641
- [56] Hesp N C H, Torre I, Rodan-Legrain D, Novelli P, Cao Y, Carr S, Fang S, Stepanov P, Barcons-Ruiz D, Herzig Sheinfux H, Watanabe K, Taniguchi T, Efetov D K, Kaxiras E, Jarillo-Herrero P, Polini M, Koppens F H L 2021 *Nat. Phys.* **17** 1162
- [57] Hu F, Das S R, Luan Y, Chung T F, Chen Y P, Fei Z 2017 *Phys. Rev. Lett.* **119** 247402
- [58] Westerhout T, Katsnelson M I, Rösner M 2021 *2D Materials* **9** 014004
- [59] Ni G X, Wang H, Jiang B Y, Chen L X, Du Y, Sun Z Y, Goldflam M D, Frenzel A J, Xie X M, Fogler M M, Basov D N 2019 *Nat. Commun.* **10** 4360
- [60] Moore S L, Ciccarino C J, Halbertal D, McGilly L J, Finney N R, Yao K, Shao Y, Ni G, Sternbach A, Telford E J, Kim B S, Rossi S E, Watanabe K, Taniguchi T, Pasupathy A N, Dean C R, Hone J, Schuck P J, Narang P, Basov D N 2021 *Nat. Commun.* **12** 5741
- [61] McGilly L J, Kerelsky A, Finney N R, Shapovalov K, Shih E M, Ghiotto A, Zeng Y, Moore S L, Wu W, Bai Y, Watanabe K, Taniguchi T, Stengel M, Zhou L, Hone J, Zhu X, Basov D N, Dean C, Dreyer C E, Pasupathy A N 2020 *Nat. Nanotechnol.* **15** 580
- [62] Vizner Stern M, Waschitz Y, Cao W, Nevo I, Watanabe K, Taniguchi T, Sela E, Urbakh M, Hod O, Ben Shalom M 2021 *Science* **372** 1462
- [63] Dean C R, Wang L, Maher P, Forsythe C, Ghahari F, Gao Y, Katoch J, Ishigami M, Moon P, Koshino M, Taniguchi T, Watanabe K, Shepard K L, Hone J, Kim P 2013 *Nature* **497** 598
- [64] Xue J, Sanchez-Yamagishi J, Bulmash D, Jacquod P, Deshpande A, Watanabe K, Taniguchi T, Jarillo-Herrero P, LeRoy B J 2011 *Nat. Mater.* **10** 282
- [65] Huang P, Riccardi E, Messelot S, Graef H, Valmorra F, Tignon J, Taniguchi T, Watanabe K, Dhillon S, Placais B, Ferreira R, Mangeney J 2020 *Nat. Commun.* **11** 863
- [66] Chen Z G, Shi Z, Yang W, Lu X, Lai Y, Yan H, Wang F, Zhang G, Li Z 2014 *Nat. Commun.* **5** 4461
- [67] Gorbachev R V, Song J C, Yu G L, Kretinin A V, Withers F, Cao Y, Mishchenko A, Grigorieva I V, Novoselov K S, Levitov L S, Geim A K 2014 *Science* **346** 448
- [68] Ni G X, Wang H, Wu J S, Fei Z, Goldflam M D, Keilmann F, Ozyilmaz B, Castro Neto A H, Xie X M, Fogler M M, Basov D N 2015 *Nat. Mater.* **14** 1217
- [69] Tang S, Wang H, Zhang Y, Li A, Xie H, Liu X, Liu L, Li T, Huang F, Xie X, Jiang M 2013 *Sci. Rep.* **3** 2666
- [70] Zheng Z, Xu N, Oscurato S L, Tamagnone M, Sun F, Jiang Y, Ke Y, Chen J, Huang W, Wilson W L, Ambrosio A, Deng S, Chen H 2019 *Sci. Adv.* **5** eaav8690
- [71] Ma W, Alonso-Gonzalez P, Li S, Nikitin A Y, Yuan J, Martin-Sanchez J, Taboada-Gutierrez J, Amenabar I, Li P, Velez S, Tollan C, Dai Z, Zhang Y, Sriram S, Kalantar-Zadeh K, Lee S T, Hillenbrand R, Bao Q 2018 *Nature* **562** 557
- [72] Taboada-Gutierrez J, Alvarez-Perez G, Duan J, Ma W, Crowley K, Prieto I, Bylinkin A, Autore M, Volkova H, Kimura K, Kimura T, Berger M H, Li S, Bao Q, Gao X P A, Errea I, Nikitin A Y, Hillenbrand R, Martin-Sanchez J, Alonso-Gonzalez P 2020 *Nat. Mater.* **19** 964
- [73] Ni G, McLeod A S, Sun Z, Matson J R, Lo C F B, Rhodes D A, Ruta F L, Moore S L, Vitalone R A, Cusco R, Artus L, Xiong L, Dean C R, Hone J C, Millis A J, Fogler M M, Edgar J H, Caldwell J D, Basov D N 2021 *Nano Lett.* **21** 5767
- [74] Yoxall E, Schnell M, Nikitin A Y, Txoperena O, Woessner A, Lundeberg M B, Casanova F, Hueso L E, Koppens F H L, Hillenbrand R 2015 *Nat. Photonics* **9** 674
- [75] Wang C, Huang S, Xing Q, Xie Y, Song C, Wang F, Yan H 2020 *Nat. Commun.* **11** 1158
- [76] Sternbach A J, Chae S H, Latini S, Rikhter A A, Shao Y, Li B, Rhodes D, Kim B, Schuck P J, Xu X, Zhu X Y, Averitt R D, Hone J, Fogler M M, Rubio A, Basov D N 2021 *Science* **371** 617
- [77] van Veen E, Nemilentsau A, Kumar A, Roldán R, Katsnelson M I, Low T, Yuan S 2019 *Phys. Rev. Appl.* **12** 014011
- [78] Wang F, Wang C, Chaves A, Song C, Zhang G, Huang S, Lei Y, Xing Q, Mu L, Xie Y, Yan H 2021 *Nat Commun* **12** 5628
- [79] Caldwell J D, Kretinin A V, Chen Y, Giannini V, Fogler M M, Francescato Y, Ellis C T, Tischler J G, Woods C R, Giles A J, Hong M, Watanabe K, Taniguchi T, Maier S A,

- Novoselov K S 2014 *Nat. Commun.* **5** 5221
- [80] Hu G, Krasnok A, Mazor Y, Qiu C W, Alu A 2020 *Nano Lett.* **20** 3217
- [81] Hu G, Ou Q, Si G, Wu Y, Wu J, Dai Z, Krasnok A, Mazor Y, Zhang Q, Bao Q, Qiu C W, Alu A 2020 *Nature* **582** 209
- [82] Chen M, Lin X, Dinh T H, Zheng Z, Shen J, Ma Q, Chen H, Jarillo-Herrero P, Dai S 2020 *Nat. Mater.* **19** 1307
- [83] Zheng Z, Sun F, Huang W, Jiang J, Zhan R, Ke Y, Chen H, Deng S 2020 *Nano Lett.* **20** 5301
- [84] Zeng Y, Ou Q, Liu L, Zheng C, Wang Z, Gong Y, Liang X, Zhang Y, Hu G, Yang Z, Qiu C W, Bao Q, Chen H, Dai Z 2022 *Nano Lett.* **22** 4260
- [85] Hu H, Chen N, Teng H, Yu R, Qu Y, Sun J, Xue M, Hu D, Wu B, Li C, Chen J, Liu M, Sun Z, Liu Y, Li P, Fan S, Garcia de Abajo F J, Dai Q 2022 *Nat. Nanotechnol.* **17** 940
- [86] Mooshammer F, Chae S, Zhang S, Shao Y, Qiu S, Rajendran A, Sternbach A J, Rizzo D J, Zhu X, Schuck P J, Hone J C, Basov D N 2022 *ACS Photonics* **9** 443
- [87] Low T, Rodin A S, Carvalho A, Jiang Y, Wang H, Xia F, Castro Neto A H 2014 *Phys. Rev. B* **90** 075434
- [88] Rodin A S, Carvalho A, Castro Neto A H 2014 *Phys. Rev. Lett.* **112** 176801
- [89] Low T, Roldan R, Wang H, Xia F, Avouris P, Moreno L M, Guinea F 2014 *Phys. Rev. Lett.* **113** 106802
- [90] Liu Z, Aydin K 2016 *Nano Lett.* **16** 3457
- [91] Correas-Serrano D, Gomez-Diaz J S, Melcon A A, Alù A 2016 *J. Opt.* **18** 104006
- [92] Xia S X, Zhai X, Wang L L, Wen S C 2019 *Opt. Lett.* **45** 93
- [93] Zheng C, Hu G, Liu X, Kong X, Wang L, Qiu C W 2022 *ACS Nano* **16** 13241
- [94] Song J C, Rudner M S 2016 *Proc. Natl. Acad. Sci. U S A* **113** 4658
- [95] Stauber T, Low T, Gomez-Santos G 2018 *Phys. Rev. Lett.* **120** 046801
- [96] Lin X, Liu Z, Stauber T, Gomez-Santos G, Gao F, Chen H, Zhang B, Low T 2020 *Phys. Rev. Lett.* **125** 077401
- [97] Stauber T, Low T, Gomez-Santos G 2020 *Nano Lett.* **20** 8711
- [98] Margetis D, Stauber T 2021 *Phys. Rev. B* **104** 115422
- [99] Kim C J, Sanchez-Castillo A, Ziegler Z, Ogawa Y, Noguez C, Park J 2016 *Nat. Nanotechnol.* **11** 520
- [100] Zhang Z, Regan E C, Wang D, Zhao W, Wang S, Sayyad M, Yumigeta K, Watanabe K, Taniguchi T, Tongay S, Crommie M, Zettl A, Zaletel M P, Wang F 2022 *Nat. Phys.* **18** 1214
- [101] Naik M H, Regan E C, Zhang Z, Chan Y H, Li Z, Wang D, Yoon Y, Ong C S, Zhao W, Zhao S, Utama M I B, Gao B, Wei X, Sayyad M, Yumigeta K, Watanabe K, Taniguchi T, Tongay S, da Jornada F H, Wang F, Louie S G 2022 *Nature* **609** 52
- [102] Alexeev E M, Ruiz-Tijerina D A, Danovich M, Hamer M J, Terry D J, Nayak P K, Ahn S, Pak S, Lee J, Sohn J I, Molas M R, Koperski M, Watanabe K, Taniguchi T, Novoselov K S, Gorbachev R V, Shin H S, Fal'ko V I, Tartakovskii A I 2019 *Nature* **567** 81
- [103] Yankowitz M, Chen S, Polshyn H, Zhang Y, Watanabe K, Taniguchi T, Graf D, Young A F, Dean C R 2019 *Science* **363** 1059
- [104] Oh M, Nuckolls K P, Wong D, Lee R L, Liu X, Watanabe K, Taniguchi T, Yazdani A 2021 *Nature* **600** 240
- [105] Cao Y, Fatemi V, Fang S, Watanabe K, Taniguchi T, Kaxiras E, Jarillo-Herrero P 2018 *Nature* **556** 43
- [106] Cao Y, Fatemi V, Demir A, Fang S, Tomarken S L, Luo J Y, Sanchez-Yamagishi J D, Watanabe K, Taniguchi T, Kaxiras E, Ashoori R C, Jarillo-Herrero P 2018 *Nature* **556** 80

SPECIAL TOPIC—Two dimensional twisted moiré superlattice

Near-field optical characterization of atomic structures and polaritons in twisted two-dimensional materials*

Xu Kun-Qi[†] Hu Cheng Shen Pei-Yue Ma Sai-Qun
Zhou Xian-Liang Liang Qi Shi Zhi-Wen[‡]

(*Key Laboratory of Artificial Structures and Quantum Control (Ministry of Education), School of Physics and Astronomy, Shanghai Jiao Tong University, Shanghai 200240, China*)

(Received 10 November 2022; revised manuscript received 7 December 2022)

Abstract

Polariton is a quasiparticle generated from strong interaction between a photon and an electric or magnetic dipole-carrying excitation. These polaritons can confine light into a small space that is beyond the diffraction limit of light, thus have greatly advanced the development of nano photonics, nonlinear optics, quantum optics and other related research. Van der Waals two-dimensional (2D) crystals provide an ideal platform for studying nano-polaritons due to reduced material dimensionality. In particular, stacking and twisting offer additional degree of freedom for manipulating polaritons that are not available in a single-layer material. In this paper, we review the near-field optical characterizations of various structures and polaritonic properties of stacked/twisted 2D crystals reported in recent years, including domain structures of stacked few-layer graphene, moiré superlattice structures of twisted 2D crystals, twisted topological polaritons, and twisted chiral plasmons. We also propose several exciting directions for future study of polaritons in stacked/twisted 2D crystals.

Keywords: twisted two-dimensional crystals, polaritons, moiré superlattice, scanning near-field optical microscopy

PACS: 71.36.+c, 07.79.Fc

DOI: 10.7498/aps.72.20222145

* Project supported by the Open Research Fund of Songshan Lake Materials Laboratory, China (Grant No. 2021SLABFK07), the National Key Research and Development Program, China (Grant No. 2021YFA1202902), the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 12074244), and the China Postdoctoral Science Foundation (Grant No. 2022M712087).

[†] Corresponding author. E-mail: xukunqi@sjtu.edu.cn

[‡] Corresponding author. E-mail: zwshi@sjtu.edu.cn

叠层/转角二维原子晶体结构与极化激元的近场光学表征

徐琨淇 胡成 沈沛约 马赛群 周先亮 梁齐 史志文

Near-field optical characterization of atomic structures and polaritons in twisted two-dimensional materials

Xu Kun-Qi Hu Cheng Shen Pei-Yue Ma Sai-Qun Zhou Xian-Liang Liang Qi Shi Zhi-Wen

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 72, 027102 (2023) DOI: 10.7498/aps.72.20222145

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.72.20222145>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

二维极化激元学近场研究进展

Recent progress of near-field studies of two-dimensional polaritonics

物理学报. 2019, 68(11): 110701 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190341>

低维材料极化激元及其耦合特性

Polaritons in low-dimensional materials and their coupling characteristics

物理学报. 2022, 71(12): 127104 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220272>

转角二维量子材料中平带相关的新奇电子态物性

Physical properties of novel electronic states related to flat band in twisted two-dimensional quantum materials

物理学报. 2022, 71(12): 127202 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220064>

石墨烯莫尔超晶格体系的拓扑性质及光学研究进展

Topological properties of graphene moiré superlattice systems and recent optical studies

物理学报. 2019, 68(22): 220303 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20191317>

石墨烯莫尔超晶格的晶格弛豫与衬底效应

Lattice relaxation and substrate effects of graphene moiré superlattice

物理学报. 2022, 71(18): 187302 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220872>

二维范德瓦耳斯半导体莫尔超晶格实验研究进展

Recent experimental research progress of two-dimensional van der Waals semiconductor moiré superlattices

物理学报. 2022, 71(12): 127309 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220347>

专题: 二维转角莫尔超晶格

转角半导体过渡金属硫族化物莫尔超晶格中的新奇物态*

汤衍浩†

(浙江大学物理学院, 量子信息交叉中心, 省重点量子技术实验室, 杭州 310063)

(2022年10月31日收到; 2022年12月14日收到修改稿)

通过转角或晶格失配构造莫尔人工超晶格, 可以对二维材料的能带结构进行有效调控并产生平带, 为研究量子多体物理提供了全新的平台. 转角过渡金属硫族化物 (TMDs) 半导体莫尔超晶格中的平带存在于较大的转角范围, 并且具有自旋-能谷互锁的能带结构以及优异的光学特性, 受到了广泛的关注. 本文聚焦于转角 TMDs 半导体, 介绍了近年来实验上发现的多种新奇物态, 包括莫特绝缘态、广义维格纳晶体、非平庸拓扑态、莫尔激子等; 还进一步讨论了对这些新奇物态的调控及其机制, 并展望了莫尔超晶格这一新兴领域未来的研究方向.

关键词: 过渡金属硫族化物, 转角半导体, 强关联效应, 激子**PACS:** 78.67.-n, 73.63.-b, 73.22.-f**DOI:** 10.7498/aps.72.20222080

1 引言

近年来, 莫尔超晶格的研究取得了极大的发展, 已经成为凝聚态物理中最为活跃和重要的研究方向之一. 莫尔纹很早就被人们所认识, 其可以通过两种周期性的图案干涉叠加而产生, 具有类似“拍频”的新奇视觉效果. 该现象最早在中国被用于纺织, 并在艺术和力学测量等领域有着一定应用^[1,2]. 近二十年来兴起的范德瓦耳斯材料及其异质结^[3-11], 让我们有机会可以从微观的层面重新审视这一人工超晶格结构. 范德瓦耳斯材料是一种层内原子通过化学键结合, 而层与层之间通过范德瓦耳斯力结合的二维材料. 当两层具有不同晶格常数或者不同转角的原子级厚度的二维材料被堆叠起来, 可以形成微观尺度上的莫尔纹. 这一现象在早期的石墨烯块材的扫描隧道显微镜 (STM) 实验中已被报道^[12,13]. 不同于宏观的莫尔纹仅仅产生视觉上的效果, 基于二维材料的莫尔纹可以让材料在原

子尺度上发生耦合, 从而产生出远不同于原本材料的物理性质^[14-17].

莫尔超晶格对二维材料的能带结构可以产生显著的调制. 2009年, Andrei 课题组^[18]利用化学气相沉积 (CVD) 生长双层石墨烯, 通过 STM 发现在具有一定相对转角的双层石墨烯中存在 AA 和 AB/BA 堆叠形成的超晶格结构, 并发现狄拉克点附近产生了新的范霍夫奇点. 2010年, Dean 等^[11]利用干式转移, 将六方氮化硼 (hBN) 作为电介质材料包裹住石墨烯, 使其免于衬底和外部的影响, 从而极大地提高了石墨烯器件质量. 研究者控制 hBN 和 Graphene 的转角, 成功制备出 hBN-Graphene 莫尔超晶格, 通过电输运发现体系在莫尔布里渊边界打开了能隙, 并且当强磁场使得磁通量的密度和莫尔晶胞可比拟时, 出现了 Hofstadter 蝴蝶效应^[19-22].

莫尔超晶格更为重要的意义在于, 通过对能带的调控可以产生平带, 结合二维材料易调控的优势, 为强关联物理和量子模拟的研究提供了一个

* 国家重点基础研究发展计划 (批准号: 2022YFA1405400, 2022YFA1402403) 和国家自然科学基金 (批准号: 12274365) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: yanhaotc@zju.edu.cn

全新的实验平台. 理论工作者预言在 1.05° 转角附近的双层石墨烯中, 电子能量随动量的线性色散被层间相互作用“完美”抑制, 从而产生平带, 而这一角度也被称为魔角^[14,15]. 由于石墨烯中电子能量色散较大, 平带只存在于很小的转角范围 (约为 0.1°). 2018 年是莫尔超晶格领域的一个重要转折点, Jarillo-Herrero 课题组通过“撕裂和旋转 (tear-and-rotate)”技术精准地控制双层石墨烯之间的转角, 结合电学掺杂调控, 在 1.1° 转角的双层石墨烯中发现了关联绝缘态^[10] 和超导态^[9]. 该研究证明了莫尔超晶格在调控乃至构筑量子新奇物态方面的巨大潜力, 从而掀起了一股莫尔超晶格“淘金”浪潮. 多种基于石墨烯的莫尔超晶格体系及其中的新奇物态被发现, 例如三层石墨烯-BN 体系^[23,24]、转角双层石墨烯-BN^[25,26]、转角双层-双层石墨烯^[27-29]、转角三层石墨烯^[30,31] 等超晶格体系, 以及其中的轨道磁性^[26]、量子反常霍尔效应^[25]、向列态^[32]、超导重入现象^[30] 等新奇物理现象. 有趣的是, 在非转角的双层和三层石墨烯中, 研究者也在更低的转变温度发现了轨道磁性和超导^[33-35].

相比于石墨烯体系, 基于半导体过渡金属硫族化物 (TMDs) 的莫尔超晶格因为其迥然不同的物理特性, 也受到了极大关注. 首先, 转角半导体 TMDs 中的平带存在于很大的转角范围 (比魔角双层石墨烯大了约 1 个量级)^[17,36,37], 极大提高了器件的重复性. 其次, 转角半导体 TMDs 中的电子相比于转角石墨烯具有更高的空间局域性^[17,36], 其 Wannier 波函数半径远小于莫尔晶格常数, 因此可以用于模拟 Hubbard 模型等晶格模型. 最后, 半导体 TMDs 具有丰富的激子态以及很好的光学性质^[38,39], 不仅为探测强关联物态提供新的途径^[40-43], 还可以用来研究玻色子强关联物理^[44].

后文将介绍半导体 TMDs 及其莫尔超晶格的物理特性, 讨论转角半导体 TMDs 中实验上发现的新奇物态以及新颖的调控机制, 最后探讨莫尔超晶格这一新兴领域未来的研究方向.

2 转角半导体 TMDs

2.1 单层半导体 TMDs

半导体 TMDs 具有六方晶格结构, 化学式为 MX_2 , 其中 M 为过渡金属 (例如 W, Mo), X 为硫族化物 (例如 S, Se, Te). 单层 TMDs 中的过渡金

属原子被两层硫族化物原子包裹. 当半导体 TMDs 块材被剥离至单层, 能带结构由间接带隙转变为直接带隙^[6,7], 价带顶和导带底位于布里渊区 K 和 K' 处. 由于空间反演对称性破缺和自旋轨道耦合, 自旋在 K 和 K' 处发生劈裂, 导致能谷位置和自旋朝向锁定^[39]. 基于这种能带结构, 利用光学方法可以选择性地激发 $K(K')$ 处的电子, 或者读取 $K(K')$ 处电子的占据信息. 同时, 由于单层 TMDs 中库仑屏蔽效应被极大地减弱, 并且 $K(K')$ 处的光学跃迁均主要来自于过渡金属的 d 轨道, TMDs 中的激子具有极大的激子结合能和极强的光与物质相互作用^[38]. 这些特点使得半导体 TMDs 成为能谷电子学的潜在候选者^[38,45].

2.2 转角 TMDs 莫尔超晶格

2.2.1 莫尔周期势

通过堆叠两层具有不同晶格常数或角度的 TMDs 单层, 当转角处于 0° 附近, 可以形成具有 AA 和 $\text{B}^{\text{XM}(\text{MX})}$ 晶格位的周期性结构, 当转角处于 60° 附近, 可以形成具有 AB 和 $\text{B}^{\text{MM}(\text{XX})}$ 晶格位的周期性结构 (图 1(a), (b)). 其中, 在 AA 晶格位上, 上下两层的 M 和 X 原子相互重叠; 在 AB 晶格位上, 上层的 M 和 X 原子分别和下层的 X 和 M 原子相互重叠; 在 B^{ij} 位上 ($i = \text{M}, \text{X}; j = \text{M}, \text{X}$), 上层的 i 原子和下层的 j 原子重叠. 为方便讨论, 默认情况下主要讨论 0° 附近的转角 TMDs. 莫尔超晶格产生的莫尔周期势, 将使得能带发生折叠, 从而形成一系列的莫尔能带, 并且能带宽度被角度所调制 (图 1(c), (d)). 在小转角和小晶格常数差的情况下, 莫尔超晶格的晶格常数 $a_{\text{M}} \approx a/\sqrt{\delta^2 + \theta^2}$, 其中 a 是 TMDs 的晶格常数, δ 是两层 TMDs 的晶格常数失配比, θ 是两层之间的转角. 莫尔周期势主要来源于两层 TMDs 中的电子在不同晶格位有着不一样的耦合强度^[17,46]. 此外, 由于晶格重构效应, TMDs 莫尔超晶格中存在周期性的应变, 例如研究者在转角 TMDs 同质结^[47] 和异质结^[48] 中, 通过 STM 观测到了上下起伏波纹状的结构. 这种应变将进一步调制单层 TMDs 中能带结构, 从而调制莫尔周期势.

2.2.2 角度缺陷 (angular disorder)

与传统材料不同, 莫尔超晶格的物理性质依赖于转角, 从而具有一种新的缺陷种类——角度

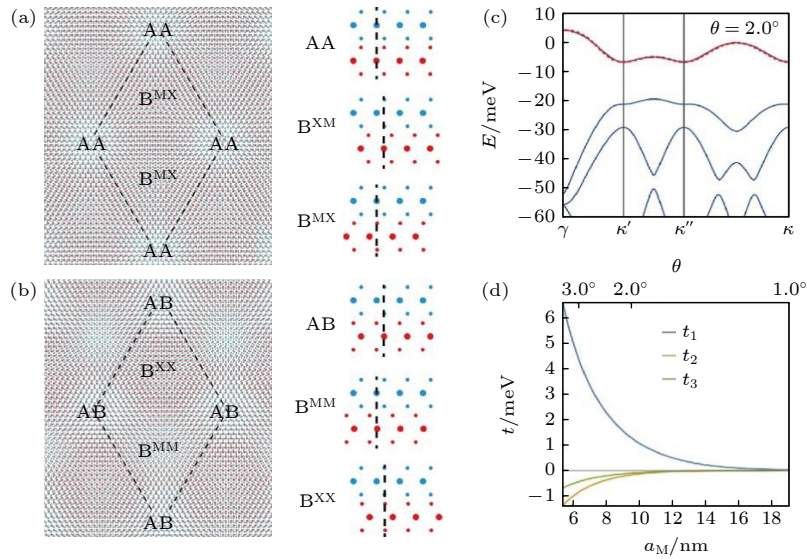


图 1 转角 TMDs 的晶格和能带结构 0° 转角 (a) 和 60° 转角 (b) TMDs 异质结的晶格结构示意图; (c) 转角 $\text{WSe}_2/\text{MoSe}_2$ 的能带图^[17]; (d) 不同晶格位之间跃迁的动能随莫尔晶格常数的依赖关系^[17]

Fig. 1. Crystal structure and band structure in twisted TMDs: The crystal structure in 0° (a) and 60° (b) twisted TMDs heterobilayer; (c) the moiré band structure of low-energy electrons in 2° twisted $\text{WSe}_2/\text{MoSe}_2$ heterobilayer^[17]; (d) the kinetic energy of electrons hopping between different moiré sites as a function of the moiré lattice constant^[17].

缺陷. 转角 TMDs 从材料构成上可以分为莫尔同质结和莫尔异质结. 在莫尔同质结中, 由于 $\delta = 0$, 莫尔晶格常数对于转角非常敏感. 虽然莫尔同质结可以通过 tear-and-rotate 的方式精确控制层间转角, 但是当两层 TMDs 堆叠在一起时, 转角往往会发生不可控的偏移, 从而使得莫尔同质结的角度空间均匀性较差^[49]. 而在莫尔异质结中, 这种角度缺陷可以很好地被抑制^[48]. 莫尔异质结中的两层 TMDs 的晶轴朝向可以通过测量极化方向依赖的二次谐波来表征, 通常精确度为 $\pm 0.5^\circ$ ^[40]. 当转角 TMDs 异质结存在较大的晶格失配时, 转角的偏差对莫尔晶格常数的影响将非常小 (例如, $\text{MoTe}_2/\text{WSe}_2$ 晶格失配约为 8%, 转角从 0° 变为 1° , 只会让莫尔晶格常数改变约 2%^[50,51]), 因此莫尔异质结通常具有更好的空间均匀性和器件的可重复性.

2.2.3 低能量电子空间局域性

与魔角双层石墨烯中平带或者强关联效应只存在于魔角附近非常小的转角范围 ($1.1^\circ \pm 0.1^\circ$) 不同^[9,10], 转角半导体 TMDs 中莫尔能带宽度随着转角变大而单调增大^[17,36], 并且在较大的转角范围内都存在强关联效应. 例如, 研究者在转角为 5° 的双层 WSe_2 中通过电学输运测量仍然观测到了关联电子态^[37]. 同时, 转角 TMDs 中的低能量电子具有较好的空间局域性. 研究者通过第一性原理的电荷密度泛函理论计算发现了 3.5° 转角的双层 MoS_2

中, 低能量空穴局域在 MX 和 XM 位^[36], 并得到了 STM 实验的进一步验证^[47]. 值得指出的是, 空穴局域的晶格位置强烈依赖于晶格重构效应, 如果不考虑晶格重构, 空穴将局域在 MM 位^[36].

2.2.4 理论模型

由于低能量电子的空间局域化, 研究者提出了基于转角半导体 TMDs 模拟晶格模型的多种方案. 转角双层 TMDs 异质结中的价带存在巨大的自旋-轨道劈裂, 可以用于模拟三角晶格中单轨道的 Hubbard 模型, 并发现在莫尔能带半填充和其他分数填充下可能存在新奇关联绝缘态和超导态^[17]; 转角双层 TMDs 同质结中存在双轨道的低能量空穴, 可以用于实现 Kane-Mele 模型, 即存在具有时间反演对称性不变的二维拓扑绝缘态^[52,53]. 转角单层-双层 TMDs 异质结同时存在空间局域电子和巡游电子, 可以用于实现 Kondo 晶格模型^[54]; 转角 TMDs 异质结中还存在空间局域化的层间莫尔激子, 可以用于实现 Bose-Hubbard 模型^[44].

3 转角半导体 TMDs 中的关联电子物态

3.1 莫特绝缘态 (Mott insulator) 及其光学探测

当体系的每个晶格上有一个电子 (填充因子为 1) 并且电子在同一晶格位上的库伦相互作用

(U) 远大于能带宽度 (W), 电子将无法自由移动, 从而形成莫特绝缘态^[55], 见图 2(a). 多个实验课题组各自通过不同的探测手段, 在转角半导体 TMDs 中发现了莫特绝缘态或关联绝缘态^[37,40,42,43].

3.1.1 转角 TMDs 异质结

Wang 课题组^[42]设计和制备了一种特殊的器件结构, 0° 转角的 WSe_2/WS_2 被分为两个区域 (有或没有顶端栅极). 研究者利用 TMDs 和金属肖特基接触形成的极大的接触电阻, 使电荷在顶栅高频电压调制下只能在转角 TMDs 的两个区域之间流动, 并结合 TMDs 光学性质对于电荷浓度的依赖关系, 标定了转角 WSe_2/WS_2 在不同电荷浓度下的等效电阻和电容. 研究发现, 当每个莫尔晶胞填充的空穴为 1 时, 等效电阻和电容分别呈现为极大和极小值, 证明了体系处于莫特绝缘态. Mak 和 Shan 课题组^[40]设计和制备了 60° 转角的 WSe_2/WS_2 的双栅极器件, 通过测量莫尔激子反射谱发现, 当莫尔晶胞填充因子为 1 时, 莫尔激子的反射强度增强, 反映了体系对于莫尔激子的屏蔽作用减弱, 证明了体系处于莫特绝缘态. 这一结论进一步被两端法输运测量验证——电阻在填充因子为 1 处增大了两个数量级. 同时, 研究者利用 TMDs 中光学跃迁的能谷选择性, 测量了磁化率随温度的依赖关系, 从而发现莫特绝缘态具有反铁磁相互作用. 值得指出的是, 这一结果和 Hubbard 模型的理论相自洽^[56], 为利用转角 TMDs 研究 Hubbard 模型打下了实验基础. 理论研究者还指出 WSe_2/WS_2 中的莫特绝缘态很有可能是一种电荷转移绝缘态, 即莫尔晶胞中填充的第 2 个电子和第 1 个不在同一晶格位上^[57], 该图像仍有待 STM 实验的检验.

3.1.2 转角 TMDs 同质结

Dean 课题组^[37]在转角为 $4^\circ-5^\circ$ 的双层 WSe_2 中通过电学输运测量发现了关联绝缘态. 由于在如

此大转角的情况下, 电子之间的库仑相互作用约为 30 meV, 最低莫尔能带宽度约为 60—80 meV, 所观测到的绝缘态和莫特绝缘态很有可能是不一样的物理机制, 例如理论研究者提出了激子密度波的物理图像^[58]. Imamoğlu 课题组^[43]设计和制备了 $MoSe_2-hBN-MoSe_2$ 器件, 两层 $MoSe_2$ 之间的转角小于 1° , 通过研究电荷在两层 $MoSe_2$ 之间的转移发现当上层或者下层 $MoSe_2$ 的填充因子为 1 时, 体系处于不可压缩态-莫特绝缘态. 由于薄层 hBN 将两层 $MoSe_2$ 在空间上分开, $MoSe_2-hBN-MoSe_2$ 的莫尔周期势远小于 TMDs 直接接触的转角体系. 值得指出的是, 双层 TMD 同质结由于具有更高的轨道简并度, 理论上可能存在拓扑非平庸物态^[52,53,59], 而双层 TMD 异质结由于轨道简并度为 1, 一般认为只包含拓扑平庸物态 (为简单起见, 目前的讨论仅局限于 K 能谷). 而实验上, 虽然未在双层 TMD 同质结中观测到拓扑非平庸的现象, 但是在 $MoTe_2/WSe_2$ 中, 通过施加极大的外加电场, 使得 $MoTe_2$ 和 WSe_2 的价带的能量互相接近, 并发生杂化, 实现了量子反常霍尔效应^[51] (见 4.1 节).

3.2 广义维格纳晶体 (generalized Wigner crystal)

与传统的强关联材料不同 (例如铜基高温超导^[56]), 由于二维材料中屏蔽效应的减弱, 莫尔超晶格中的近邻和次近邻库仑相互作用变得不可被忽略, 从而导致广义维格纳晶体的形成^[60,61], 见图 2(b)—(d). 相比于二维自由电子气中维格纳晶体 (要求 Wigner-Seitz 半径 $r_s \geq 31$, 正比于电子库仑相互作用和动能的比值)^[62], 莫尔周期势的存在使得广义维格纳晶体更加稳定.

多个课题组^[41,42,63]在转角半导体 TMDs 观测到了丰富的广义维格纳晶体. Wang 课题组^[42]利用 3.1 节中讨论的光学技术研究了 WSe_2/WS_2 在

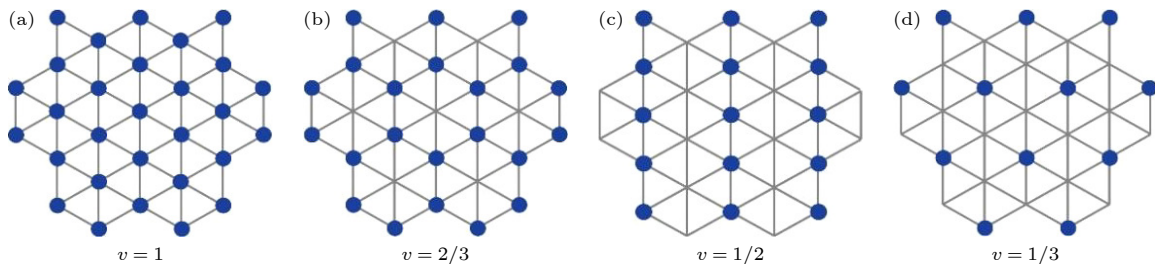


图 2 转角 TMDs 中的关联绝缘态的电荷分布示意图

Fig. 2. The schematic of the correlated states in twisted TMDs.

填充因子远离 1 的情形, 在 $1/3$ 和 $2/3$ 填充因子处发现了关联绝缘态, 即广义的维格纳晶体 (图 2(b), (d)). 在这些分数填充时, 电荷排布形成了不同于莫尔超晶格平移对称性的周期性结构, 例如, 在 $1/3$ 和 $2/3$ 填充因子时, 电荷分别形成新的三角晶格和蜂窝晶格. Mak 和 Shan 课题组 [41] 设计了一种新颖的器件结构, 将单层 WSe_2 堆叠在转角 WSe_2/WS_2 之上, 中间用薄层 hBN 隔离. 研究者利用单层 TMDs 中的里德伯激子 (2S 激子) 作为“探针”, 表征了 2S 激子反射谱随莫尔超晶格中电荷浓度的依赖关系, 发现了许多分数填充因子下的广义维格纳晶体, 例如 $1/3$, $2/3$, $1/2$, $2/5$, $3/5$ 等, 见图 2. 这些维格纳晶体也被近场微波阻抗测量所验证 [63]. 同时, 研究者进一步研究了 WSe_2/WS_2 的光学克尔效应, 发现体系在 $1/2$ 填充因子时处于条纹态 (stripe phase), 打破了莫尔超晶格的旋转对称性 [64], 见图 2(c). 通过表征 WSe_2/WS_2 中磁化率随电荷浓度的依赖关系, 发现在 $2/3$ 填充因子处由于广义维格纳晶体的形成使得反铁磁相互作用被极大地减弱 [65]. Wang 课题组 [66] 还进一步利用 STM 直接表征了转角 WSe_2/WS_2 中电荷的空间分布随电荷浓度的依赖关系, 直接观测到了广义维格纳晶体在 $1/3$ 填充因子处呈三角晶格, $2/3$ 填充因子处呈蜂窝晶格, $1/2$ 填充因子呈条纹状晶格.

4 转角半导体 TMDs 中的电子态调控

4.1 电子关联性调控

通过调控电子关联性, 即 U/W , 可以产生丰富的物理现象. 例如, 研究者通过计算发现当三角晶格中电子关联性逐渐减弱, 填充因子为 1 的基态将从 120° 非共线反铁磁, 转变为非磁性绝缘态, 最后变为费米液体金属态, 其中非磁性绝缘态被认为是量子自旋液体的候选者 [67–69]. 然而, 传统强关联材料的电子关联性和材料本身锁定, 对其调控往往需要通过极端的高压条件改变晶格常数来实现 [70], 实验上较为困难. 而莫尔超晶格由于其构成材料的丰富性和优异的调控性能, 为电子关联性的调控和新物态的发现创造了新的机遇.

4.1.1 金属-绝缘态相变

多个课题组在转角半导体 TMDs 中实现了电子关联性驱动的金属-绝缘态相变 [71,50,72]. Mak 和

Shan 课题组 [50] 在 0° 转角的 $\text{MoTe}_2/\text{WSe}_2$ 中实现了对电子关联性的连续调节, 发现了莫特绝缘态-金属态的连续相变. 研究者巧妙地利用了 $\text{MoTe}_2/\text{WSe}_2$ 较大的晶格失配比 ($\sim 8\%$), 制备了高电荷浓度的莫特绝缘态 ($\sim 5 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$), 克服了 TMDs 和金属接触具有极大接触电阻的难题, 为开展高质量的电学运输测量创造了条件. 研究者利用外加电场减小 MoTe_2 和 WSe_2 价带之间的能量间隙, 从而等效地增大能带宽度, 发现莫特绝缘态连续地演变成了金属态. 通过标度分析, 发现不同电场下的电阻变温曲线“塌缩”至两条金属和绝缘态的曲线, 并确定了量子临界点. 同时, Dean 课题组 [71] 也在转角双层 WSe_2 中, 发现了电荷掺杂驱动的金属-绝缘态的相变, 并发现电阻在相变点处表现为奇异金属 (strange metal)——电阻随温度成线性变化. Mak 和 Shan 课题组 [72] 还进一步制备了转角 $\text{MoSe}_2/\text{WS}_2$, 利用外加电场调控 $\text{MoSe}_2/\text{WS}_2$ 能带宽度以及 2 S 激子反射谱探测介电常数, 发现了广义维格纳晶体绝缘态-金属态的连续相变.

4.1.2 拓扑非平庸的关联电子态

一般认为双层 TMDs 同质结中的双轨道能带可以构造非平庸的拓扑态 [52,53,59], 而双层 TMDs 异质结中的低能量电子态 (单轨道) 一般是拓扑平庸的. 例如, 双层 MoTe_2 中价带顶位于 K 处 (W 的 $d_{x^2-y^2}$ 和 d_{xy} 及 S 的 p_x 和 p_y 轨道), 具有巨大的自旋轨道耦合并且层间耦合较弱, 具有来自上下两层的简并度 (轨道简并度为 2), 进一步通过莫尔超晶格中位置依赖的层间耦合, 可以构造出层间自旋 (layer-pseudospin) 磁场势, 从而具有拓扑非平庸物态 [53]. 与双层 MoTe_2 形成强烈对比的是, 在双层 WS_2 中, 由于价带顶来自布里渊区中的 Γ 处 (W 的 d_{z^2} 和 S 的 p_z 轨道), 价带电子相互杂化从而层间退简并, 形成了反键 (antibonding) 态 (和高能量的键 (bonding) 态远远分开, 轨道简并度为 1), 从而只具有拓扑平庸物态 [73]. 虽然至今仍然没有双层 TMDs 同质结中非平庸拓扑物态的实验报道, 令人惊讶的是, Mak 和 Shan 课题组 [51] 在 60° 转角的 $\text{MoTe}_2/\text{WSe}_2$ 异质结中观测到了拓扑非平庸的关联电子态. 相比于 0° 转角样品, 在外加电场驱动下, 60° 转角的异质结中填充因子为 1 的基态不仅从莫特绝缘态逐渐转变到金属态, 在相变附近, 还在零磁场下具有整数化的霍尔电导——量

子反常霍尔效应 (电导为 e^2/h , 转变温度为 2 K 左右). 研究者还进一步在填充因子为 2 处发现了量子自旋霍尔效应, 观测到了接近整数化的电导 ($\approx 2e^2/h$, 转变温度为 2 K 左右)^[74]. 并且, 该体系中 MoTe_2 的价带较平, 提供了局域化空穴, 而 WSe_2 的价带能量色散较大, 提供了巡游的空穴. 研究者通过分别调控局域化空穴和巡游空穴的浓度, 发现了重费米子的证据, 实现了 Kondo 晶格^[75].

4.2 其他新型的调控方式

4.2.1 光学调控

Xu 课题组^[76]设计和制备了转角 WSe_2/WS_2 并利用栅极电压对其进行电荷掺杂, 通过共振光学激发产生层间激子, 发现体系处于铁磁态. 该铁磁态的机制被认为类似于 RKKY^[77], 电荷“浸没”在层间激子中, 并通过其实现了电子在不同晶格位之间自旋关联.

4.2.2 库仑屏蔽调控

Mak 和 Shan 课题组^[65]设计和制备了一种新型的器件结构, 将薄层金属二维材料放置于转角 WSe_2/WS_2 之上, 中间用薄层 hBN 隔离, 发现金属的库仑屏蔽效应可以使转角 TMDs 中维格纳晶体绝缘态转变成金属态, 并且原来的反铁磁相互作用被极大地抑制.

4.2.3 压力调控

Wang 课题组^[78]发展了原位调控压力的技术, 利用光纤头按压转角 WSe_2/WS_2 从而调制层间耦合, 通过反射谱和荧光谱, 发现了莫尔激子随着压力增大不断红移.

5 莫尔激子

与电子能带类似, 激子在莫尔周期势下会形成多个莫尔能带, 从而导致莫尔激子的出现. MacDonald 课题组^[16]通过连续模型计算了转角 TMDs 异质结中的激子能带, 研究了莫尔激子的反射谱随转角的依赖关系, 并发现莫尔激子具有非平庸的拓扑性. Wang 课题组^[79]和 Tartakovskii 课题组^[80]分别实验研究了转角 WSe_2/WS_2 和转角 $\text{MoSe}_2/\text{WS}_2$, 通过反射谱测量发现原本单一的激子反射峰在小角度转角 TMDs 中演变为多个激子峰, 即莫尔激

子. Xu 课题组^[81]和 Li 课题组^[82]也各自通过荧光谱测量在转角 $\text{MoSe}_2/\text{WSe}_2$ 中观测到了莫尔激子的证据. 进一步, Mak 和 Shan 课题组^[83]通过电场调控, 在 WSe_2/WS_2 中观测到了层间激子和层内激子的强烈杂化效应. Louie 课题组^[84]通过第一性原理计算, 并考虑了晶格重构效应, 指出转角 WSe_2/WS_2 中构成莫尔层内激子的电子和空穴分布在不同的莫尔晶格位上. Xu 课题组^[85]和 Liu 课题组^[86]各自通过调控转角 $\text{WSe}_2/\text{MoSe}_2$ 中的电荷浓度, 发现了莫尔激子和电荷耦合形成的莫尔带电激子. Jin 课题组^[87]利用光学泵浦产生层间激子, 同时结合反射谱测量莫尔激子的能谱变化, 寻找到了基于层间激子的玻色莫特绝缘态的证据.

6 展 望

莫尔超晶格领域在短短几年间得到了喷涌式的发展, 未来也将充满丰富的可能性. 首先, 目前被深入探索的莫尔晶格体系主要集中于石墨烯和 TMDs, 相比于庞大的二维材料体系仍然十分稀少. 探索基于其他二维材料的莫尔超晶格体系 (例如, 基于斜方晶体二维材料探索二维矩形或一维的莫尔超晶格中的强关联物理^[88–90]), 对于发现新物态和新物理将有着重要作用, 这也有待理论和实验研究者的共同努力. 其次, 探索新型的莫尔超晶格调控手段也是一个重要的方向. 例如, 目前莫尔周期势主要取决于转角, 但是器件制备完成之后转角难以调控. 能否发展连续调控莫尔周期势的方法, 例如压力^[91]和应力调控^[92], 对于研究莫尔超晶格中的物态机理十分重要. 同时, 莫尔超晶格器件往往具有较为复杂的器件结构, 极易出现“气泡”以及转角不均匀性等缺陷^[49,93]. 如何克服上述困难从而进一步提高器件质量, 将为发现新物态创造更多可能性. 最后, 当前已有一些室温条件下基于转角半导体 TMDs 的光电器件的研究^[94,95], 持续地探索莫尔超晶格在实际应用中的可能性将对于保持整个领域的活力十分重要.

参考文献

- [1] Sen A K 2000 *Comput. Graph.* **24** 471
- [2] Post D, Han B, Ifju P 1997 *High Sensitivity Moiré: Experimental Analysis for Mechanics and Materials* (Springer Science & Business Media)
- [3] Geim A K, Grigorieva I V 2013 *Nature* **499** 419

- [4] Novoselov K S, Mishchenko A, Carvalho A, Castro Neto A H 2016 *Science* **353** aac9439
- [5] Novoselov K S, Geim A K, Morozov S V, Jiang D, Zhang Y, Dubonos S V, Grigorieva I V, Firsov A A 2004 *Science* **306** 666
- [6] Mak K F, Lee C, Hone J, Shan J, Heinz T F 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 136805
- [7] Splendiani A, Sun L, Zhang Y, Li T, Kim J, Chim C Y, Galli G, Wang F 2010 *Nano Lett.* **10** 1271
- [8] Zhang Y, Tan Y W, Stormer H L, Kim P 2005 *Nature* **438** 201
- [9] Cao Y, Fatemi V, Fang S, Watanabe K, Taniguchi T, Kaxiras E, Jarillo-Herrero P 2018 *Nature* **556** 43
- [10] Cao Y, Fatemi V, Demir A, Fang S, Tomarken S L, Luo J Y, Sanchez-Yamagishi J D, Watanabe K, Taniguchi T, Kaxiras E, Ashoori R C, Jarillo-Herrero P 2018 *Nature* **556** 80
- [11] Dean C R, Young A F, Meric I, Lee C, Wang L, Sorgenfrei S, Watanabe K, Taniguchi T, Kim P, Shepard K L, Hone J 2010 *Nat. Nanotechnol.* **5** 722
- [12] Rong Z Y, Kuiper P 1993 *Phys. Rev. B* **48** 17427
- [13] Pong W T, Durkan C 2005 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **38** R329
- [14] Bistritzer R, MacDonald A H 2011 *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.* **108** 12233
- [15] Suárez Morell E, Correa J D, Vargas P, Pacheco M, Barticevic Z 2010 *Phys. Rev. B* **82** 121407
- [16] Wu F, Lovorn T, MacDonald A H 2017 *Phys. Rev. Lett.* **118** 147401
- [17] Wu F, Lovorn T, Tutuc E, MacDonald A H 2018 *Phys. Rev. Lett.* **121** 26402
- [18] Li G, Luican A, Lopes dos Santos J M B, Castro Neto A H, Reina A, Kong J, Andrei E Y 2010 *Nat. Phys.* **6** 109
- [19] Dean C R, Wang L, Maher P, Forsythe C, Ghahari F, Gao Y, Katoch J, Ishigami M, Moon P, Koshino M, Taniguchi T, Watanabe K, Shepard K L, Hone J, Kim P 2013 *Nature* **497** 598
- [20] Hofstadter D R 1976 *Phys. Rev. B* **14** 2239
- [21] Hunt B, Sanchez-Yamagishi J D, Young A F, Yankowitz M, LeRoy B J, Watanabe K, Taniguchi T, Moon P, Koshino M, Jarillo-Herrero P, Ashoori R C 2013 *Science* **340** 1427
- [22] Ponomarenko L A, Gorbachev R V, Yu G L, Elias D C, Jalil R, Patel A A, Mishchenko A, Mayorov A S, Woods C R, Wallbank J R, Mucha-Kruczynski M, Piot B A, Potemski M, Grigorieva I V, Novoselov K S, Guinea F, Fal'ko V I, Geim A K 2013 *Nature* **497** 594
- [23] Chen G, Sharpe A L, Gallagher P, Rosen I T, Fox E J, Jiang L, Lyu B, Li H, Watanabe K, Taniguchi T, Jung J, Shi Z, Goldhaber-Gordon D, Zhang Y, Wang F 2019 *Nature* **572** 215
- [24] Chen G, Sharpe A L, Fox E J, Zhang Y H, Wang S, Jiang L, Lyu B, Li H, Watanabe K, Taniguchi T, Shi Z, Senthil T, Goldhaber-Gordon D, Zhang Y, Wang F 2020 *Nature* **579** 56
- [25] Serlin M, Tschirhart C L, Polshyn H, Zhang Y, Zhu J, Watanabe K, Taniguchi T, Balents L, Young A F 2020 *Science* **367** 900
- [26] Sharpe A L, Fox E J, Barnard A W, Finney J, Watanabe K, Taniguchi T, Kastner M A, Goldhaber-Gordon D 2019 *Science* **365** 605
- [27] Liu X, Hao Z, Khalaf E, Lee J Y, Ronen Y, Yoo H, Haei Najafabadi D, Watanabe K, Taniguchi T, Vishwanath A, Kim P 2020 *Nature* **583** 221
- [28] Cao Y, Rodan-Legrain D, Rubies-Bigorda O, Park J M, Watanabe K, Taniguchi T, Jarillo-Herrero P 2020 *Nature* **583** 215
- [29] Shen C, Chu Y, Wu Q, Li N, Wang S, Zhao Y, Tang J, Liu J, Tian J, Watanabe K, Taniguchi T, Yang R, Meng Z Y, Shi D, Yazyev O V, Zhang G 2020 *Nat. Phys.* **16** 520
- [30] Cao Y, Park J M, Watanabe K, Taniguchi T, Jarillo-Herrero P 2021 *Nature* **595** 526
- [31] Park J M, Cao Y, Watanabe K, Taniguchi T, Jarillo-Herrero P 2021 *Nature* **590** 249
- [32] Cao Y, Rodan-Legrain D, Park J M, Yuan N F Q, Watanabe K, Taniguchi T, Fernandes R M, Fu L, Jarillo-Herrero P 2021 *Science* **372** 264
- [33] Zhou H, Xie T, Ghazaryan A, Holder T, Ehrets J R, Spanton E M, Taniguchi T, Watanabe K, Berg E, Serbyn M, Young A F 2021 *Nature* **598** 429
- [34] Zhou H, Xie T, Taniguchi T, Watanabe K, Young A F 2021 *Nature* **598** 434
- [35] Zhou H, Holleis L, Saito Y, Cohen L, Huynh W, Patterson C L, Yang F, Taniguchi T, Watanabe K, Young A F 2022 *Science* **375** 774
- [36] Naik M H, Jain M 2018 *Phys. Rev. Lett.* **121** 266401
- [37] Wang L, Shih E M, Ghiotto A, Xian L, Rhodes D A, Tan C, Claassen M, Kennes D M, Bai Y, Kim B, Watanabe K, Taniguchi T, Zhu X, Hone J, Rubio A, Pasupathy A N, Dean C R 2020 *Nat. Mater.* **19** 861
- [38] Mak K F, Shan J 2016 *Nat. Photonics* **10** 216
- [39] Mak K F, Xiao D, Shan J 2018 *Nat. Photonics* **12** 451
- [40] Tang Y, Li L, Li T, Xu Y, Liu S, Barmak K, Watanabe K, Taniguchi T, MacDonald A H, Shan J, Mak K F 2020 *Nature* **579** 353
- [41] Xu Y, Liu S, Rhodes D A, Watanabe K, Taniguchi T, Hone J, Elser V, Mak K F, Shan J 2020 *Nature* **587** 214
- [42] Regan E C, Wang D, Jin C, Bakti Utama M I, Gao B, Wei X, Zhao S, Zhao W, Zhang Z, Yumigeta K, Blei M, Carlström J D, Watanabe K, Taniguchi T, Tongay S, Crommie M, Zettl A, Wang F 2020 *Nature* **579** 359
- [43] Shimazaki Y, Schwartz I, Watanabe K, Taniguchi T, Kroner M, Imamoğlu A 2020 *Nature* **580** 472
- [44] Götting N, Lohof F, Gies C 2022 *Phys. Rev. B* **105** 165419
- [45] Schaibley J R, Yu H, Clark G, Rivera P, Ross J S, Seyler K L, Yao W, Xu X 2016 *Nat. Rev. Mater.* **1** 16055
- [46] Ruiz-Tijerina D A, Fal'ko V I 2019 *Phys. Rev. B* **99** 30
- [47] Zhang Z, Wang Y, Watanabe K, Taniguchi T, Ueno K, Tutuc E, LeRoy B J 2020 *Nat. Phys.* **16** 1093
- [48] Li H, Li S, Naik M H, Xie J, Li X, Wang J, Regan E, Wang D, Zhao W, Zhao S, Kahn S, Yumigeta K, Blei M, Taniguchi T, Watanabe K, Tongay S, Zettl A, Louie S G, Wang F, Crommie M F 2021 *Nat. Mater.* **20** 945
- [49] McGilly L J, Kerelsky A, Finney N R, Shapovalov K, Shih E M, Ghiotto A, Zeng Y, Moore S L, Wu W, Bai Y, Watanabe K, Taniguchi T, Stengel M, Zhou L, Hone J, Zhu X, Basov D N, Dean C, Dreyer C E, Pasupathy A N 2020 *Nat. Nanotechnol.* **15** 580
- [50] Li T, Jiang S, Li L, Zhang Y, Kang K, Zhu J, Watanabe K, Taniguchi T, Chowdhury D, Fu L, Shan J, Mak K F 2021 *Nature* **597** 350
- [51] Li T, Jiang S, Shen B, Zhang Y, Li L, Tao Z, Devakul T, Watanabe K, Taniguchi T, Fu L, Shan J, Mak K F 2021 *Nature* **600** 641
- [52] Devakul T, Crépel V, Zhang Y, Fu L 2021 *Nat. Commun.* **12** 6730
- [53] Wu F, Lovorn T, Tutuc E, Martin I, MacDonald A H 2019 *Phys. Rev. Lett.* **122** 86402
- [54] Kumar A, Hu N C, MacDonald A H, Potter A C 2022 *Phys. Rev. B* **106** L041116
- [55] Mott N F 1968 *Rev. Mod. Phys.* **40** 677

- [56] Lee P A, Nagaosa N, Wen X G 2006 *Rev. Mod. Phys.* **78** 17
- [57] Zhang Y, Yuan N F Q, Fu L 2019 arXiv: 1910.14061
- [58] Bi Z, Fu L 2021 *Nat. Commun.* **12** 642
- [59] Pan H, Wu F, Das Sarma S 2020 *Phys. Rev. Res.* **2** 33087
- [60] Hotta C, Furukawa N 2006 *Phys. Rev. B* **74** 193107
- [61] Tocchio L F, Gros C, Zhang X F, Eggert S 2014 *Phys. Rev. Lett.* **113** 246405
- [62] Tanatar B, Ceperley D M 1989 *Phys. Rev. B* **39** 5005
- [63] Huang X, Wang T, Miao S, Wang C, Li Z, Lian Z, Taniguchi T, Watanabe K, Okamoto S, Xiao D, Shi S F, Cui Y T 2021 *Nat. Phys.* **17** 715
- [64] Jin C, Tao Z, Li T, Xu Y, Tang Y, Zhu J, Liu S, Watanabe K, Taniguchi T, Hone J C, Fu L, Shan J, Mak K F 2021 *Nat. Mater.* **20** 940
- [65] Tang Y, Su K, Li L, Xu Y, Liu S, Watanabe K, Taniguchi T, Hone J, Jian C M, Xu C, Mak K F, Shan J 2022 arXiv: 2204.08148
- [66] Li H, Li S, Regan E C, Wang D, Zhao W, Kahn S, Yumigeta K, Blei M, Taniguchi T, Watanabe K, Tongay S, Zettl A, Crommie M F, Wang F 2021 *Nature* **597** 650
- [67] Yoshioka T, Koga A, Kawakami N 2009 *Phys. Rev. Lett.* **103** 36401
- [68] Li G, Antipov A E, Rubtsov A N, Kirchner S, Hanke W 2014 *Phys. Rev. B* **89** 161118
- [69] Szasz A, Motruk J, Zaletel M P, Moore J E 2020 *Phys. Rev. X* **10** 21042
- [70] Imada M, Fujimori A, Tokura Y 1998 *Rev. Mod. Phys.* **70** 1039
- [71] Ghiotto A, Shih E M, Pereira G S S G, Rhodes D A, Kim B, Zang J, Millis A J, Watanabe K, Taniguchi T, Hone J C, Wang L, Dean C R, Pasupathy A N 2021 *Nature* **597** 345
- [72] Tang Y, Gu J, Liu S, Watanabe K, Taniguchi T, Hone J C, Mak K F, Shan J 2022 *Nat. Commun.* **13** 4271
- [73] Angeli M, MacDonald A H 2021 *Proc. Natl. Acad. Sci.* **118** e2021826118
- [74] Zhao W, Kang K, Li L, Tschirhart C, Redekop E, Watanabe K, Taniguchi T, Young A, Jie S, Mak K F 2022 arXiv: 2207.02312
- [75] Zhao W, Shen B, Tao Z, Han Z, Kang K, Watanabe K, Taniguchi T, Mak K F, Shan J 2022 arXiv: 2211.00263
- [76] Wang X, Xiao C, Park H, Zhu J, Wang C, Taniguchi T, Watanabe K, Yan J, Xiao D, Gamelin D R, Yao W, Xu X 2022 *Nature* **604** 468
- [77] Van Vleck J H 1962 *Rev. Mod. Phys.* **34** 681
- [78] Zhao W, Regan E C, Wang D, Jin C, Hsieh S, Wang Z, Wang J, Wang Z, Yumigeta K, Blei M, Watanabe K, Taniguchi T, Tongay S, Yao N Y, Wang F 2021 *Nano Lett.* **21** 8910
- [79] Jin C, Regan E C, Yan A, Iqbal Bakti Utama M, Wang D, Zhao S, Qin Y, Yang S, Zheng Z, Shi S, Watanabe K, Taniguchi T, Tongay S, Zettl A, Wang F 2019 *Nature* **567** 76
- [80] Alexeev E M, Ruiz-Tijerina D A, Danovich M, Hamer M J, Terry D J, Nayak P K, Ahn S, Pak S, Lee J, Sohn J I, Molas M R, Koperski M, Watanabe K, Taniguchi T, Novoselov K S, Gorbachev R V, Shin H S, Fal'ko V I, Tartakovskii A I 2019 *Nature* **567** 81
- [81] Seyler K L, Rivera P, Yu H, Wilson N P, Ray E L, Mandrus D G, Yan J, Yao W, Xu X 2019 *Nature* **567** 66
- [82] Tran K, Moody G, Wu F, Lu X, Choi J, Kim K, Rai A, Sanchez D A, Quan J, Singh A, Embley J, Zepeda A, Campbell M, Autry T, Taniguchi T, Watanabe K, Lu N, Banerjee S K, Silverman K L, Kim S, Tutuc E, Yang L, MacDonald A H, Li X 2019 *Nature* **567** 71
- [83] Tang Y, Gu J, Liu S, Watanabe K, Taniguchi T, Hone J, Mak K F, Shan J 2021 *Nat. Nanotechnol.* **16** 52
- [84] Naik M H, Regan E C, Zhang Z, Chan Y H, Li Z, Wang D, Yoon Y, Ong C S, Zhao W, Zhao S, Utama M I B, Gao B, Wei X, Sayyad M, Yumigeta K, Watanabe K, Taniguchi T, Tongay S, da Jornada F H, Wang F, Louie S G 2022 *Nature* **609** 52
- [85] Wang X, Zhu J, Seyler K L, Rivera P, Zheng H, Wang Y, He M, Taniguchi T, Watanabe K, Yan J, Mandrus D G, Gamelin D R, Yao W, Xu X 2021 *Nat. Nanotechnol.* **16** 1208
- [86] Liu E, Barré E, van Baren J, Wilson M, Taniguchi T, Watanabe K, Cui Y T, Gabor N M, Heinz T F, Chang Y C, Lui C H 2021 *Nature* **594** 46
- [87] Xiong R, Nie J H, Brantly S L, Hays P, Sailus R, Watanabe K, Taniguchi T, Tongay S, Jin C 2022 arXiv: 2207.10764
- [88] Wang P, Yu G, Kwan Y H, Jia Y, Lei S, Klemenz S, Cevallos F A, Singha R, Devakul T, Watanabe K, Taniguchi T, Sondhi S L, Cava R J, Schoop L M, Parameswaran S A, Wu S 2022 *Nature* **605** 57
- [89] Gebredingle Y, Joe M, Lee C 2022 *J. Korean Phys. Soc.* **81** 325
- [90] Kennes D M, Xian L, Claassen M, Rubio A 2020 *Nat. Commun.* **11** 1124
- [91] Yankowitz M, Chen S, Polshyn H, Zhang Y, Watanabe K, Taniguchi T, Graf D, Young A F, Dean C R 2019 *Science* **363** 1059
- [92] Cenker J, Sivakumar S, Xie K, Miller A, Thijssen P, Liu Z, Dismukes A, Fonseca J, Anderson E, Zhu X, Roy X, Xiao D, Chu J H, Cao T, Xu X 2022 *Nat. Nanotechnol.* **17** 256
- [93] Purdie D G, Pugno N M, Taniguchi T, Watanabe K, Ferrari A C, Lombardo A 2018 *Nat. Commun.* **9** 5387
- [94] Yang D, Wu J, Zhou B T, Liang J, Ideue T, Siu T, Awan K M, Watanabe K, Taniguchi T, Iwasa Y, Franz M, Ye Z 2022 *Nat. Photonics* **16** 469
- [95] Ma C, Yuan S, Cheung P, Watanabe K, Taniguchi T, Zhang F, Xia F 2022 *Nature* **604** 266

SPECIAL TOPIC—Two dimensional twisted moiré superlattice

Exotic states in moiré superlattices of twisted semiconducting transition metal dichalcogenides*

Tang Yan-Hao[†]

(Interdisciplinary Center for Quantum Information, Zhejiang Province Key Laboratory of Quantum Technology,

Department of Physics, Zhejiang University, Hangzhou 310063, China)

(Received 31 October 2022; revised manuscript received 14 December 2022)

Abstract

Moiré superlattices formed by van der Waals materials with small lattice mismatch or twist angle open an unprecedented approach to generate flat bands that don't exist in the "parent" materials, which provides a controllable platform for exploring quantum many body physics. Owing to the wide angle range for the existence of flat bands, as well as the valley-spin-locking band structure and the excellent optical properties, twisted semiconducting transition metal dichalcogenides (TMDs) heterostructures have recently attracted lots of attention. In this review, we discuss the exotic states discovered in the twisted TMDs heterostructures, including Mott insulator, generalized Wigner crystals, topological non-trivial states, and moiré excitons, how to manipulate these exotic states and related mechanisms, and finally some perspectives on the opportunities and challenges in this field.

Keywords: transition metal dichalcogenides, twisted semiconductor, strong correlation, exciton

PACS: 78.67.-n, 73.63.-b, 73.22.-f

DOI: [10.7498/aps.72.20222080](https://doi.org/10.7498/aps.72.20222080)

* Project supported by the National Basic Research Program of China (Grant Nos. 2022YFA1405400, 2022YFA1402403) and the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 12274365).

[†] Corresponding author. E-mail: yanhaotc@zju.edu.cn

转角半导体过渡金属硫族化合物莫尔超晶格中的新奇物态

汤衍浩

Exotic states in moiré superlattices of twisted semiconducting transition metal dichalcogenides

Tang Yan-Hao

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 72, 027802 (2023) DOI: 10.7498/aps.72.20222080

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.72.20222080>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

二维半导体材料中激子对介电屏蔽效应的探测及其应用

Detection of dielectric screening effect by excitons in two-dimensional semiconductors and its application

物理学报. 2022, 71(12): 127102 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220054>

基于过渡金属硫族化合物同质结的光电探测器

Photodetectors based on homojunctions of transition metal dichalcogenides

物理学报. 2021, 70(17): 177301 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210859>

过渡金属硫族化合物柔性基底体系的模型与应用

Model and applications of transition metal dichalcogenides based compliant substrate epitaxy system

物理学报. 2018, 67(21): 218102 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20181571>

II-VI族稀磁半导体微纳结构中的激子磁极化子及其发光

Excitonic magnetic polarons and their luminescence in II-VI diluted magnetic semiconductor micro-nanostructures

物理学报. 2019, 68(1): 017101 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20181211>

二维范德瓦耳斯半导体莫尔超晶格实验研究进展

Recent experimental research progress of two-dimensional van der Waals semiconductor moiré superlattices

物理学报. 2022, 71(12): 127309 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220347>

WS₂与WSe₂单层膜中的A激子及其自旋动力学特性研究

Dynamics of A-exciton and spin relaxation in WS₂ and WSe₂ monolayer

物理学报. 2019, 68(1): 017201 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20181769>

专题: 二维转角莫尔超晶格

二维半导体莫尔超晶格中随位置与
动量变化的层间耦合*郭瑞平¹⁾ 俞弘毅^{1)2)†}

1) (中山大学物理与天文学院, 广东省量子精密测量与传感重点实验室, 珠海 519082)

2) (中山大学, 光电材料与技术国家重点实验室, 广州 510275)

(2022年10月26日收到; 2022年11月29日收到修改稿)

近些年来引起广泛关注的二维半导体莫尔超晶格系统中存在着莫尔激子、强关联电子态和面外铁电性等新奇物理现象, 电子的层间耦合对于理解这些现象至关重要. 本文研究了二维半导体双层莫尔超晶格中的层间耦合随位置和动量的变化. 外势场导致的局域布洛赫波包的层间耦合与波包宽度以及中心位置处的层间平移有着密切关系. 同时, 层间耦合随动量的变化使得基态 S 型波包和激发态 p^\pm 型波包有着截然不同的随中心位置变化的层间耦合形式: 在两个 S 型波包的层间耦合消失的位置, S 和 p^+ 型 (或 S 和 p^- 型) 波包之间的层间耦合达到最强. 利用该性质, 可以通过外加光电场来调控特定谷的基态波包的层间输运. 此外, 双层系统中发现的面外铁电性可以归结为不同层导带和价带间的耦合导致的电子在两层中的再分配现象. 将本文得到的层间耦合形式与单层紧束缚模型相结合, 可计算出垂直平面的电偶极密度, 其随层间平移的变化形式和数量级与实验观测相符.

关键词: 二维半导体, 过渡金属硫族化合物, 莫尔超晶格, 层间耦合

PACS: 73.43.Cd, 73.21.Cd, 73.22.-f, 73.21.Ac

DOI: 10.7498/aps.72.20222046

1 引言

近 10 年来, 过渡金属硫族化合物 (transition-metal dichalcogenides, TMDs) 这种二维材料因其在下一代光电技术中的应用潜力而受到了物理、化学和材料等研究领域的高度关注^[1-3]. TMDs (包括 MoS_2 , MoSe_2 , MoTe_2 , WS_2 和 WSe_2)、六方氮化硼 (hexagonal boron nitride, hBN) 和石墨烯均为具有层状结构的二维材料, 每一个单层为共价键组成的六角晶格, 而层与层之间则以较弱的范德瓦耳斯力结合. 当前用于获得单层二维材料的技术, 包括机械剥离、化学气相沉积和分子束外延生长法, 已经发展得比较成熟. 单层极限下, 这些二维

材料在费米面附近的能带边均位于六角布里渊区能量简并但不等价的两个角落 $\pm\mathbf{K}$, 称为谷赝自旋^[4]. 但与先前已经受到广泛关注的石墨烯不同, 单层 TMDs 是直接能隙位于红外到可见光波段的半导体, 因此非常适合光电和半导体光学相关的应用器件^[1-3]. 此外, 过渡金属的强自旋轨道耦合效应使得 TMDs 的 $\pm\mathbf{K}$ 谷价带 (导带) 携带符号相反、大小在 0.15—0.40(0.03) eV 的自旋劈裂, 导致了带边附近谷赝自旋和自旋的一一对应^[5]: 如果能量最低的位于 $+\mathbf{K}$ 谷的空穴具有向下的自旋, 那么具有相同能量的位于 $-\mathbf{K}$ 谷的空穴具有向上的自旋. 这也使 TMDs 成为设计制造自旋/谷电子学器件的理想平台之一.

将两个单层系统上下堆叠得到的范德瓦耳斯

* 国家自然科学基金 (批准号: 12274477) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: yuhy33@mail.sysu.edu.cn

双层结构可极大地扩展二维层状材料在研究和应用上的前景^[6]. 与单层 TMDs 相比, 相邻层之间的层间耦合效应带来了双层 TMDs 中更为丰富的可调控性和新奇物理现象, 尤其是当双层系统中存在莫尔超晶格时^[7,8]. 莫尔超晶格出现在两层材料的晶格常数非常接近而且晶格朝向几乎一致时, 其周期通常在几纳米到十几纳米之间, 远大于单层材料的晶格常数 (3 Å 左右). 在一个超原胞内的不同位置, 层间耦合随不同层原子的上下堆叠方式的改变而缓慢变化^[9], 导致层间距、超晶格势、光学属性和层赭自旋等众多物理性质随位置的变化^[10–15]. 这进一步导致例如莫尔激子^[16–21]、强关联多体电子态^[22–33]和垂直平面的铁电性^[34–42]等实验现象. 为了理解这些新奇物理现象背后的物理机制, 有必要在先前已有的结论上^[9], 对二维层状半导体材料中层间耦合的形式进行更深入的分析 and 讨论.

本文从单层 TMDs 的电子布洛赫波本征态出发, 推导了双层 TMDs 莫尔超晶格中的层间耦合随位置和动量的变化. 通过分析发现, 非局域的布洛赫波和局域的布洛赫波包的层间耦合随位置和动量的变化可导致莫尔超晶格势的出现以及电子在不同层的再分配, 这也是很多实验现象背后的物理机制. 本文内容简述如下: 第 2 节是关于晶格匹配或不匹配的双层系统中非局域化的布洛赫波之间的层间耦合; 以此为基础, 第 3 节给出了莫尔超晶格中局域化的布洛赫波包之间的层间耦合形式, 并将其与晶格匹配的双层结构中的布洛赫波层间耦合做了对比; 第 4 节讨论了近期实验上观测到的双层系统中的垂直平面电偶极矩, 它可被层间耦合导致的电子在不同层的再分配现象很好地解释; 第 5 节对全文做了总结, 并讨论了采用的研究方法的局限性.

2 非局域化的布洛赫波之间的层间耦合形式

2.1 单层材料中的电子布洛赫函数

对于 TMDs、hBN 和石墨烯这些二维层状材料, 同一层内部的原子之间是通过共价键结合, 而不同层之间则是以较弱的范德瓦耳斯键结合. 因此通常采用的处理方法是以前单层材料的电子布洛赫函数为出发点, 将层与层之间的耦合效应看作微

扰. 单层 TMDs 中电子的哈密顿量为

$$\hat{H}_{1\text{layer}} = -\frac{\hbar^2}{2m} \frac{\partial^2}{\partial \mathbf{r}^2} + \sum_{\mathbf{R}} V(\mathbf{r} - \mathbf{R}), \quad (1)$$

等号右边第二项代表单层 TMDs 的周期晶格势, \mathbf{R} 是过渡金属原子 M 在二维平面上的位置. 该哈密顿量的本征态为单层布洛赫函数 $\psi_{n,\mathbf{k}}(\mathbf{r})$, 其中 n 为能带指标, \mathbf{k} 为晶格动量. $\psi_{n,\mathbf{k}}(\mathbf{r})$ 可以展开成以下原子轨道线性组合的布洛赫和形式:

$$\psi_{n,\mathbf{k}}(\mathbf{r}) = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\mathbf{R}} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{R}} D_{n,\mathbf{k}}(\mathbf{r} - \mathbf{R}), \quad (2)$$

其中 N 是系统总的原胞数目, $D_{n,\mathbf{k}}(\mathbf{r} - \mathbf{R})$ 是局域在 \mathbf{R} 附近的原子轨道线性组合, 其组合方式随 n 和 \mathbf{k} 而变化.

本文主要关注导带 ($n = c$) 和价带 ($n = v$) 电子在六角布里渊区角落 $\tau\mathbf{K}$ 点附近的性质 ($\tau = \pm$ 为谷赭自旋). 在 $\pm\mathbf{K}$ 点, 导带和价带布洛赫函数的主要成分分别是过渡金属的 $d_0 \equiv d_{z^2}$ 和 $d_{\pm 2} \equiv \frac{d_{x^2-y^2} \pm id_{xy}}{\sqrt{2}}$ 轨道^[5], 它们分别携带 0 和 ± 2 的角动量子数. 布洛赫函数 $\psi_{n,\tau\mathbf{K}}$ 满足 $\hat{C}_3\psi_{n,\tau\mathbf{K}}(\mathbf{r}) = e^{-i\tau\frac{2\pi}{3}C_3(n)}\psi_{n,\tau\mathbf{K}}(\mathbf{r})$, 即具有 \hat{C}_3 对称性 (\hat{C}_3 为 120° 旋转算符), 这里的量子数 $C_3(n)$ 与旋转中心的选择有关^[43], 参见表 1.

表 1 导带和价带布洛赫函数在 K 点的 C_3 量子数在不同旋转中心下的取值, 其中 M 为过渡金属, X 为硫族原子, h 为 M 和 X 组成的正六边形中心

Table 1. The C_3 quantum numbers of the conduction and valence band Bloch functions at K for different rotation centers. Here M is the transition-metal site, X is the chalcogen site, and h is the hollow center of the hexagon formed by M and X.

	M	X	h
$\psi_{c,K}$	0	-1	+1
$\psi_{v,K}$	-1	+1	0

由于 \hat{C}_3 对称性, $\tau\mathbf{K}$ 点布洛赫函数的原子轨道组合中只能出现 $d_{0,\pm 2}$ 的一种, 对应 $D_{c,\tau\mathbf{K}} = d_0$ 和 $D_{v,\tau\mathbf{K}} = d_{2\tau}$. 但是在 $\mathbf{q} \neq 0$ 的 $\tau\mathbf{K} + \mathbf{q}$ 处, 这 3 种 d 轨道都会出现在 $D_{n,\tau\mathbf{K}+\mathbf{q}}$ 中, 其具体组合方式可以通过求解 $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$ 哈密顿量来得到. 考虑布洛赫函数的周期部分 $u_{n,\mathbf{k}}(\mathbf{r}) = e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}\psi_{n,\mathbf{k}}(\mathbf{r})$, 在 $|\mathbf{q}| \ll |\mathbf{K}|$ 时可以用以下二能带的 $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$ 哈密顿量来描述 $u_{n,\tau\mathbf{K}+\mathbf{q}}$ 随动量 $\mathbf{q} = (q_x, q_y)$ 的变化^[5]:

$$\begin{aligned} \hat{H}_{\tau\mathbf{K}+\mathbf{q}} = & \frac{\Delta}{2} (|u_{c,\tau\mathbf{K}}\rangle\langle u_{c,\tau\mathbf{K}}| - |u_{v,\tau\mathbf{K}}\rangle\langle u_{v,\tau\mathbf{K}}|) \\ & + \alpha\tau q_{-\tau} |u_{c,\tau\mathbf{K}}\rangle\langle u_{v,\tau\mathbf{K}}| \\ & + \alpha\tau q_{\tau} |u_{v,\tau\mathbf{K}}\rangle\langle u_{c,\tau\mathbf{K}}| + O(q^2), \end{aligned} \quad (3)$$

其中, $\Delta \sim 2$ eV 为导带和价带之间的能隙, $\alpha \sim 0.4$ eV·nm 为模型参数^[5], $q_{\tau} \equiv q_x + i\tau q_y$. 微扰求解该哈密顿量 (保留到 q 一阶) 得到 $u_{c,\tau\mathbf{K}+\mathbf{q}} \approx u_{c,\tau\mathbf{K}} + \tau \frac{\alpha q_{\tau}}{\Delta} u_{v,\tau\mathbf{K}}$, $u_{v,\tau\mathbf{K}+\mathbf{q}} \approx u_{v,\tau\mathbf{K}} - \tau \frac{\alpha q_{-\tau}}{\Delta} u_{c,\tau\mathbf{K}}$. 于是 $\tau\mathbf{K} + \mathbf{q}$ 处原子轨道线性组合的形式为

$$D_{c,\tau\mathbf{K}+\mathbf{q}} \approx d_0 + \tau \frac{\alpha q_{\tau}}{\Delta} d_{2\tau}, D_{v,\tau\mathbf{K}+\mathbf{q}} \approx d_{2\tau} - \tau \frac{\alpha q_{-\tau}}{\Delta} d_0. \quad (4)$$

上述结果利用了 $e^{i\mathbf{q}\cdot(\mathbf{r}-\mathbf{R})} d_m(\mathbf{r}-\mathbf{R}) \approx d_m(\mathbf{r}-\mathbf{R})$ 的性质 ($m = 0, \pm 2$), 这是因为 $|\mathbf{q}| \ll |\mathbf{K}|$, 而且 $d_m(\mathbf{r}-\mathbf{R})$ 是一个高度局域化的原子轨道, 其绝对值随 $|\mathbf{r}-\mathbf{R}|$ 指数衰减.

2.2 双层材料中不同层布洛赫函数之间的层间耦合

从 (2) 式的单层 TMDs 布洛赫函数出发, 可推导出不同层布洛赫函数之间的层间耦合形式. 双层 TMDs 系统中的电子哈密顿量为

$$\hat{H}_{2\text{layer}} = -\frac{\hbar^2}{2m} \frac{\partial^2}{\partial \mathbf{r}^2} + \sum_{\mathbf{R}'} V'(\mathbf{r}-\mathbf{R}') + \sum_{\mathbf{R}} V(\mathbf{r}-\mathbf{R}), \quad (5)$$

其中等式右边第二 (三) 项为上 (下) 层 TMDs 的周期晶格势. 这里用带撇的符号表示上层 TMDs 中的物理量, 而不带撇的符号则表示下层. 为了方便计算, 将上 (下) 层 TMDs 晶格的金属原子位置写成 $\mathbf{R}' = l'_{1,2} \mathbf{a}'_{1,2}$ ($\mathbf{R} = \mathbf{r}_0 + l_{1,2} \mathbf{a}_{1,2}$), 其中 $\mathbf{a}'_{1,2}$ ($\mathbf{a}_{1,2}$) 为晶格基矢, $l'_{1,2}$ 和 $l_{1,2}$ 为任意整数, \mathbf{r}_0 为下层 TMDs 相对于上层的平移 (见图 1(a)). 需要指出的是, 由于双层系统是通过较弱的范德瓦耳斯力结合, 因此不需要让两层的晶格相互匹配, 也即 $\mathbf{a}_{1,2}$ 和 $\mathbf{a}'_{1,2}$ 的大小和方向均可以不同.

双层哈密顿量又可写成 $\hat{H}_{2\text{layer}} = \hat{H}'_{1\text{layer}} + \hat{H}_T = \hat{H}_{1\text{layer}} + \hat{H}'_T$, 其中 $\hat{H}'_{1\text{layer}}$ ($\hat{H}_{1\text{layer}}$) 是上 (下) 层 TMDs 的哈密顿量, $\hat{H}'_T \equiv \sum_{\mathbf{R}'} V'(\mathbf{r}-\mathbf{R}')$ ($\hat{H}_T \equiv \sum_{\mathbf{R}} V(\mathbf{r}-\mathbf{R})$) 为上 (下) 层的周期晶格势. 由于上层和下层的布洛赫态 $\psi_{n',\mathbf{k}'}$, $\psi_{n,\mathbf{k}}$ 分别局域在垂直方向上的不同位置, 它们之间几乎无交叠 ($\langle \psi_{n',\mathbf{k}'} | \psi_{n,\mathbf{k}} \rangle \approx 0$), 因此 $\psi_{n',\mathbf{k}'}$ 和 $\psi_{n,\mathbf{k}}$ 之间的层间耦合为 $\langle \psi_{n,\mathbf{k}} | \hat{H}_{2\text{layer}} | \psi_{n',\mathbf{k}'} \rangle \approx \langle \psi_{n,\mathbf{k}} | \hat{H}_T | \psi_{n',\mathbf{k}'} \rangle \approx$

$\langle \psi_{n,\mathbf{k}} | \hat{H}'_T | \psi_{n',\mathbf{k}'} \rangle$. 从 $\psi_{n',\mathbf{k}'}$ 和 $\psi_{n,\mathbf{k}}$ 出发可以将双层 TMDs 的哈密顿量写成:

$$\begin{aligned} \hat{H}_{2\text{layer}} = & \sum_{n,\mathbf{k}} (E_{n,\mathbf{k}} + \Delta E_{n,\mathbf{k}}) |\psi_{n,\mathbf{k}}\rangle\langle \psi_{n,\mathbf{k}}| \\ & + \sum_{n',\mathbf{k}'} (E_{n',\mathbf{k}'} + \Delta E_{n',\mathbf{k}'}) |\psi_{n',\mathbf{k}'}\rangle\langle \psi_{n',\mathbf{k}'}| \\ & + \sum_{n,\mathbf{k},n',\mathbf{k}'} \langle \psi_{n,\mathbf{k}} | \hat{H}_T | \psi_{n',\mathbf{k}'} \rangle |\psi_{n,\mathbf{k}}\rangle\langle \psi_{n',\mathbf{k}'}| \\ & + \text{h.c.}, \end{aligned} \quad (6)$$

式中, $\Delta E_{n,\mathbf{k}} \equiv \langle \psi_{n,\mathbf{k}} | \hat{H}'_T | \psi_{n,\mathbf{k}} \rangle$ 和 $\Delta E_{n',\mathbf{k}'} \equiv \langle \psi_{n',\mathbf{k}'} | \hat{H}_T | \psi_{n',\mathbf{k}'} \rangle$ 代表某一层对另一层的能量修正. 本文重点关注第三行的层间耦合项, 利用 (2) 式有:

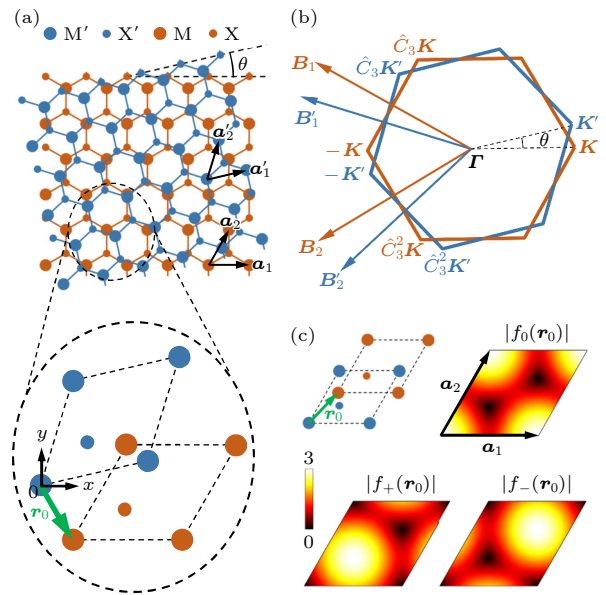


图 1 双层 TMDs 中布洛赫电子之间的层间耦合 (a) 层间转角为 θ 的双层 TMDs 示意图, 其中蓝 (橙) 色大圆圈代表上 (下) 层的过渡金属原子 M' (M), 蓝 (橙) 色小圆圈代表上 (下) 层的硫族原子 X' (X); 下半部分为局部放大后得到的不同层的原胞, 平面坐标原点选在上层的某个过渡金属原子上; (b) 上下层的六角布里渊区示意图; (c) 在两层 TMDs 晶格完全匹配的情况下, (14) 式中的 $|f_0(\mathbf{r}_0)|$, $|f_+(\mathbf{r}_0)|$ 和 $|f_-(\mathbf{r}_0)|$ 随层间平移 \mathbf{r}_0 的变化

Fig. 1. Interlayer coupling in bilayer TMDs: (a) Schematic illustration of a bilayer TMDs with a twist angle θ , where large blue (orange) circles stand for the transition-metal atoms M' (M) in the upper (lower) layer, small blue (orange) circles are the chalcogen atoms X' (X) in the upper (lower) layer. The lower part indicates an enlarged view of unit cells in two layers. The xy -coordinate origin is set on a transition-metal atom of the upper layer, and a nearby transition-metal atom in the lower layer has the spatial coordinate \mathbf{r}_0 . (b) The upper- and lower-layer Brillouin zones. (c) The values of $|f_0(\mathbf{r}_0)|$, $|f_+(\mathbf{r}_0)|$ and $|f_-(\mathbf{r}_0)|$ in Eq. (14) as functions of \mathbf{r}_0 when the two TMDs lattices are fully commensurate.

$$\langle \psi_{n,\mathbf{k}} | \hat{H}_T | \psi_{n',\mathbf{k}'} \rangle = \sum_{\mathbf{R}\mathbf{R}'} \frac{e^{i\mathbf{k}'\cdot\mathbf{R}' - i\mathbf{k}\cdot\mathbf{R}}}{\sqrt{NN'}} \int d\mathbf{r} D_{n,\mathbf{k}}^*(\mathbf{r}-\mathbf{R}) \times \hat{H}_T D_{n',\mathbf{k}'}(\mathbf{r}-\mathbf{R}'). \quad (7)$$

在忽略层间相互作用导致的晶格形变时, \hat{H}_T 具有下层 TMDs 晶格的周期性, 因此 $\int d\mathbf{r} D_{n,\mathbf{k}}^*(\mathbf{r}-\mathbf{R}) \cdot \hat{H}_T D_{n',\mathbf{k}'}(\mathbf{r}-\mathbf{R}') \equiv T_{n,\mathbf{k}}^{n',\mathbf{k}'}(\mathbf{R}'-\mathbf{R})$ 是 $\mathbf{R}'-\mathbf{R}$ 的函数, 此即为双中心近似^[44-46]. 引入傅里叶变换 $T_{n,\mathbf{k}}^{n',\mathbf{k}'}(\mathbf{R}'-\mathbf{R}) = \sum_{\mathbf{q}} \frac{e^{-i\mathbf{q}\cdot(\mathbf{R}'-\mathbf{R})}}{\sqrt{NN'}} T_{n,\mathbf{k}}^{n',\mathbf{k}'}(\mathbf{q})$, 可将 (7) 式写成:

$$\langle \psi_{n,\mathbf{k}} | \hat{H}_T | \psi_{n',\mathbf{k}'} \rangle = \sum_{\mathbf{G}\mathbf{G}'} \delta_{\mathbf{k}'+\mathbf{G}',\mathbf{k}+\mathbf{G}} T_{n,\mathbf{k}}^{n',\mathbf{k}'}(\mathbf{k}+\mathbf{G}) e^{i\mathbf{G}\cdot\mathbf{r}_0}, \quad (8)$$

式中 $\mathbf{G}'(\mathbf{G})$ 是上(下)层 TMDs 晶格的倒格矢. (8) 式中的 $\delta_{\mathbf{k}'+\mathbf{G}',\mathbf{k}+\mathbf{G}}$ 意味着只有存在倒格矢 \mathbf{G} 和 \mathbf{G}' 使得 $\mathbf{k}' = \mathbf{k} + \mathbf{G} - \mathbf{G}'$ 时, 布洛赫态 $\psi_{n,\mathbf{k}}$ 和 $\psi_{n',\mathbf{k}'}$ 之间才存在非零的耦合矩阵元. (8) 式适用于 TMDs、hBN 和石墨烯等六角晶格以及其他非六角晶格的二维材料, 而先前的多个关于石墨烯^[44-46] 和 TMDs^[9,11] 的工作已得到了该结果.

注意到 $T_{n,\mathbf{k}}^{n',\mathbf{k}'}(\mathbf{R}'-\mathbf{R}) \equiv \langle D_{n,\mathbf{k},\mathbf{R}} | \hat{H}_T | D_{n',\mathbf{k}',\mathbf{R}'} \rangle$ 代表不同层原子轨道线性组合的层间耦合, 为 $\mathbf{R}'-\mathbf{R}$ 的平滑衰减函数, 因此其傅里叶变换 $T_{n,\mathbf{k}}^{n',\mathbf{k}'}(\mathbf{q})$ 应随着 $|\mathbf{q}|$ 的增加而迅速衰减. 可近似地取 $T_{n,\mathbf{k}}^{n',\mathbf{k}'}(\mathbf{R}'-\mathbf{R}) \propto e^{-|\mathbf{R}'-\mathbf{R}|/\sigma}$, 对应 $T_{n,\mathbf{k}}^{n',\mathbf{k}'}(\mathbf{q}) \propto (1 + \sigma^2|\mathbf{q}|^2)^{-3/2}$, 其中衰减的特征长度 σ 应与层间距在同一量级 ($\sim 1 \text{ \AA}$), 这使得 (8) 式的求和中需要考虑的 \mathbf{G} 和 \mathbf{G}' 的数目其实非常少.

在能带边所在的布里渊区角落附近, $\psi_{n,\tau\mathbf{K}+\mathbf{q}}$ 和 $\psi_{n',\tau'\mathbf{K}'+\mathbf{q}'}$ 之间的耦合为

$$\begin{aligned} & \langle \psi_{n,\tau\mathbf{K}+\mathbf{q}} | \hat{H}_T | \psi_{n',\tau'\mathbf{K}'+\mathbf{q}'} \rangle \\ &= e^{-i\tau\mathbf{K}\cdot\mathbf{r}_0} \sum_{\kappa\kappa'} \delta_{\tau'\kappa'+\mathbf{q}',\tau\kappa+\mathbf{q}} \\ & \quad \times e^{i\tau\kappa\cdot\mathbf{r}_0} T_{n,\tau\mathbf{K}+\mathbf{q}}^{n',\tau'\mathbf{K}'+\mathbf{q}'}(\tau\kappa+\mathbf{q}), \end{aligned} \quad (9)$$

式中, $\kappa \equiv \mathbf{K} + \mathbf{G}$ 和 $\kappa' \equiv \mathbf{K}' + \mathbf{G}'$. 在 (9) 式的求和中, 最重要的是 $|\kappa|$ 和 $|\kappa'|$ 最小的那些项, 分别对应 $\kappa = \mathbf{K}, \hat{C}_3\mathbf{K}, \hat{C}_3^2\mathbf{K}$ 和 $\kappa' = \mathbf{K}', \hat{C}_3\mathbf{K}', \hat{C}_3^2\mathbf{K}'$, 而其余 κ 和 κ' 的贡献可以忽略. 一般情况下由于两层 TMDs 的晶格常数不同以及层间转角的存在, 不同层的布里渊区角落 $\tau\mathbf{K}, \tau\hat{C}_3\mathbf{K}, \tau\hat{C}_3^2\mathbf{K}$ 和 $\tau'\mathbf{K}', \tau'\hat{C}_3\mathbf{K}', \tau'\hat{C}_3^2\mathbf{K}'$ 不重合 (见图 1(b)). 实验

上关注的莫尔超晶格出现在 $a_{1,2}$ 和 $a'_{1,2}$ 的大小近似相等, 同时两层之间的转角非常接近 0° (称为 R 类堆叠) 或 60° (称为 H 类堆叠) 的时候. 这两种情况下, (9) 式中需要考虑的 $(\tau'\kappa', \tau\kappa)$ 分别是 $\pm(\mathbf{K}', \mathbf{K})$, $\pm(\hat{C}_3\mathbf{K}', \hat{C}_3\mathbf{K})$, $\pm(\hat{C}_3^2\mathbf{K}', \hat{C}_3^2\mathbf{K})$ 和 $\pm(-\mathbf{K}', \mathbf{K})$, $\pm(-\hat{C}_3\mathbf{K}', \hat{C}_3\mathbf{K})$, $\pm(-\hat{C}_3^2\mathbf{K}', \hat{C}_3^2\mathbf{K})$.

为便于讨论, 不妨取 R 类堆叠下 $(\tau, \tau') = (+, +)$, 而 H 类堆叠下 $(\tau, \tau') = (+, -)$. 利用 (4) 式的原子轨道展开式, 可得在 R 类堆叠下 (保留到 \mathbf{q} 的一阶):

$$\begin{aligned} T_{c,\mathbf{K}+\mathbf{q}}^{c',\mathbf{K}'+\mathbf{q}'}(\kappa+\mathbf{q}) &\approx T_0^0(\kappa+\mathbf{q}) + q_- \frac{\alpha}{\Delta} T_2^0(\kappa) \\ &\quad + q'_+ \frac{\alpha'}{\Delta} T_0^2(\kappa), \\ T_{v,\mathbf{K}+\mathbf{q}}^{v',\mathbf{K}'+\mathbf{q}'}(\kappa+\mathbf{q}) &\approx T_2^2(\kappa+\mathbf{q}) - q'_- \frac{\alpha'}{\Delta} T_2^0(\kappa) \\ &\quad - q_+ \frac{\alpha}{\Delta} T_0^2(\kappa), \\ T_{c,\mathbf{K}+\mathbf{q}}^{c',\mathbf{K}'+\mathbf{q}'}(\kappa+\mathbf{q}) &\approx T_2^0(\kappa+\mathbf{q}) + q'_+ \frac{\alpha'}{\Delta} T_2^2(\kappa) \\ &\quad - q_+ \frac{\alpha}{\Delta} T_0^0(\kappa), \\ T_{v,\mathbf{K}+\mathbf{q}}^{v',\mathbf{K}'+\mathbf{q}'}(\kappa+\mathbf{q}) &\approx T_0^2(\kappa+\mathbf{q}) + q_- \frac{\alpha}{\Delta} T_2^2(\kappa) \\ &\quad - q'_- \frac{\alpha'}{\Delta} T_0^0(\kappa). \end{aligned} \quad (10)$$

而在 H 类堆叠下

$$\begin{aligned} T_{c,\mathbf{K}+\mathbf{q}}^{c',-\mathbf{K}'+\mathbf{q}'}(\kappa+\mathbf{q}) &\approx T_0^0(\kappa+\mathbf{q}) + q_- \frac{\alpha}{\Delta} T_2^0(\kappa) \\ &\quad - q'_- \frac{\alpha'}{\Delta} T_0^{-2}(\kappa), \\ T_{v,\mathbf{K}+\mathbf{q}}^{v',-\mathbf{K}'+\mathbf{q}'}(\kappa+\mathbf{q}) &\approx T_2^{-2}(\kappa+\mathbf{q}) + q'_+ \frac{\alpha'}{\Delta} T_2^0(\kappa) \\ &\quad - q_+ \frac{\alpha}{\Delta} T_0^{-2}(\kappa), \\ T_{c,\mathbf{K}+\mathbf{q}}^{c',-\mathbf{K}'+\mathbf{q}'}(\kappa+\mathbf{q}) &\approx T_2^0(\kappa+\mathbf{q}) - q_+ \frac{\alpha}{\Delta} T_0^0(\kappa) \\ &\quad - q'_- \frac{\alpha'}{\Delta} T_2^{-2}(\kappa), \\ T_{v,\mathbf{K}+\mathbf{q}}^{v',-\mathbf{K}'+\mathbf{q}'}(\kappa+\mathbf{q}) &\approx T_0^{-2}(\kappa+\mathbf{q}) + q_- \frac{\alpha}{\Delta} T_2^{-2}(\kappa) \\ &\quad + q'_+ \frac{\alpha'}{\Delta} T_0^0(\kappa). \end{aligned} \quad (11)$$

其中 $T_m^{m'}(\mathbf{k})$ 是 $T_m^{m'}(\mathbf{R}'-\mathbf{R})$ 的傅里叶变换, 而 $T_m^{m'}(\mathbf{R}'-\mathbf{R}) \equiv \int d\mathbf{r} d\mathbf{r}' d_m^*(\mathbf{r}-\mathbf{R}) \hat{H}_T d_{m'}(\mathbf{r}-\mathbf{R}')$ 为不同层 d 轨道之间的层间耦合. 注意到 d 轨道和 \hat{H}_T 都具有 \hat{C}_3 不变性, 且 $d_m(\hat{C}_3\mathbf{r}) = e^{i\frac{2\pi}{3}m} d_m(\mathbf{r})$, 于是 $T_m^{m'}(\hat{C}_3\mathbf{k}) = e^{i\frac{2\pi}{3}(m'-m)} T_m^{m'}(\mathbf{k})$. 对 $\kappa = \mathbf{K}, \hat{C}_3\mathbf{K}$ 和 $\hat{C}_3^2\mathbf{K}$ 求和可得 (9) 式在保留到 \mathbf{q} 一阶时的简化结果. 为简单起见, 只给出两个价带之间的层间耦合形式, 其余情况可类似导出. R 类和 H 类堆叠下分别有:

$$\begin{aligned}
 \langle \psi_{\nu, \mathbf{K}+\mathbf{q}} | \hat{H}_T | \psi_{\nu', \mathbf{K}'+\mathbf{q}'} \rangle_{\text{R}} &\approx \delta_{\mathbf{q}'-\mathbf{q}, \mathbf{Q}_0} (t_2^2(\mathbf{Q}_0) + \gamma_{\text{VV}'}^{\text{R}} q_- + \beta_{\text{VV}'}^{\text{R}} q_+) \\
 &+ \delta_{\mathbf{q}'-\mathbf{q}, \hat{C}_3 \mathbf{Q}_0} e^{i\mathbf{B}_1 \cdot \mathbf{r}_0} (t_2^2(\mathbf{Q}_0) + e^{i\frac{2\pi}{3}} \gamma_{\text{VV}'}^{\text{R}} q_- + e^{i\frac{4\pi}{3}} \beta_{\text{VV}'}^{\text{R}} q_+) + \delta_{\mathbf{q}'-\mathbf{q}, \hat{C}_3^2 \mathbf{Q}_0} e^{i\mathbf{B}_2 \cdot \mathbf{r}_0} (t_2^2(\mathbf{Q}_0) + e^{i\frac{4\pi}{3}} \gamma_{\text{VV}'}^{\text{R}} q_- + e^{i\frac{2\pi}{3}} \beta_{\text{VV}'}^{\text{R}} q_+), \\
 \langle \psi_{\nu, \mathbf{K}+\mathbf{q}} | \hat{H}_T | \psi_{\nu', -\mathbf{K}'+\mathbf{q}'} \rangle_{\text{H}} &\approx \delta_{\mathbf{q}'-\mathbf{q}, \mathbf{Q}_0} (t_2^{-2}(\mathbf{Q}_0) + q_- \gamma_{\text{VV}'}^{\text{H}} + q_+ \beta_{\text{VV}'}^{\text{H}}) \\
 &+ \delta_{\mathbf{q}'-\mathbf{q}, \hat{C}_3 \mathbf{Q}_0} e^{i\mathbf{B}_1 \cdot \mathbf{r}_0} (e^{i\frac{4\pi}{3}} t_2^{-2}(\mathbf{Q}_0) + q_- \gamma_{\text{VV}'}^{\text{H}} + e^{i\frac{2\pi}{3}} q_+ \beta_{\text{VV}'}^{\text{H}}) + \delta_{\mathbf{q}'-\mathbf{q}, \hat{C}_3^2 \mathbf{Q}_0} e^{i\mathbf{B}_2 \cdot \mathbf{r}_0} (e^{i\frac{2\pi}{3}} t_2^{-2}(\mathbf{Q}_0) + q_- \gamma_{\text{VV}'}^{\text{H}} + e^{i\frac{4\pi}{3}} q_+ \beta_{\text{VV}'}^{\text{H}}), \quad (12)
 \end{aligned}$$

其中 $\mathbf{Q}_0 \equiv \mathbf{K} - \tau' \mathbf{K}'$, $\mathbf{B}_1 \equiv \hat{C}_3 \mathbf{K} - \mathbf{K}$ 和 $\mathbf{B}_2 \equiv \hat{C}_3^2 \mathbf{K} - \mathbf{K}$ ($\mathbf{B}'_1 \equiv \tau' \hat{C}_3 \mathbf{K}' - \tau' \mathbf{K}'$ 和 $\mathbf{B}'_2 \equiv \tau' \hat{C}_3^2 \mathbf{K}' - \tau' \mathbf{K}'$) 为下(上)层的倒格基矢, 见图 1(b). 其余参数为 $t_m' \equiv T_m'(\mathbf{K})$, $\beta_{\text{VV}'}^{\text{R}} \equiv \left. \frac{\partial T_2^2(\mathbf{k})}{\partial k_+} \right|_{\mathbf{k}=\mathbf{K}} - \frac{\alpha}{\Delta} t_0^2$, $\gamma_{\text{VV}'}^{\text{R}} \equiv \left. \frac{\partial T_2^2(\mathbf{k})}{\partial k_-} \right|_{\mathbf{k}=\mathbf{K}} - \frac{\alpha'}{\Delta} t_0^2$, $\beta_{\text{VV}'}^{\text{H}} \equiv \left. \frac{\partial T_2^{-2}(\mathbf{k})}{\partial k_+} \right|_{\mathbf{k}=\mathbf{K}} + \frac{\alpha'}{\Delta} t_0^2 - \frac{\alpha}{\Delta} t_0^{-2}$, $\gamma_{\text{VV}'}^{\text{H}} \equiv \left. \frac{\partial T_2^{-2}(\mathbf{k})}{\partial k_-} \right|_{\mathbf{k}=\mathbf{K}}$. $t_2^2(\mathbf{Q}_0) \equiv t_2^2 + \gamma_{\text{VV}'}^{\text{R}} Q_{0,-}$, $t_2^{-2}(\mathbf{Q}_0) \equiv t_2^{-2} + \frac{\alpha'}{\Delta} t_0^2 Q_{0,+}$.

(12) 式中 \mathbf{q} 的零阶项结果与文献 [9] 一致, 而这里保留的 \mathbf{q} 的一阶项反映了层间耦合随动量的变化, $t_2^{\pm 2}(\mathbf{Q}_0)$ 中与 \mathbf{Q}_0 有关的项则是来源于 \mathbf{q}' 的一阶项, 这些一阶项对局域化的 p^{\pm} 型电子波包的层间耦合有很大影响. 另外, 对第一性原理计算结果的拟合发现, 两个导带之间的零阶耦合强度 $|t_0^0| \approx 2 \text{ meV}$ 比价带之间的 $|t_2^{\pm 2}| \approx 10 \text{ meV}$ 和导带与价带之间的 $|t_2^0|, |t_0^{-2}| \approx 15 \text{ meV}$ 小 1 个数量级 [9,14], 因此导带间层间耦合的 \mathbf{q} 一阶项的影响会比较显著.

由 (12) 式可得, 通过层间耦合直接或间接联系的两个布洛赫态 (可以位于同一层或不同层) 的动量之差必然有 $l_1 \mathbf{b}_1 + l_2 \mathbf{b}_2$ 的形式, 这里 $\mathbf{b}_1 \equiv \mathbf{Q}_0 - \hat{C}_3 \mathbf{Q}_0 = \mathbf{B}'_1 - \mathbf{B}_1$, $\mathbf{b}_2 \equiv \mathbf{Q}_0 - \hat{C}_3^2 \mathbf{Q}_0 = \mathbf{B}'_2 - \mathbf{B}_2$, $l_{1,2}$ 为任意整数. 这相当于受到一个以 $\mathbf{b}_{1,2}$ 作为倒格基矢的超晶格势的作用, 此即为莫尔超晶格效应. 超晶格的布里渊区为 $\pm \mathbf{Q}_0$, $\pm \hat{C}_3 \mathbf{Q}_0$ 和 $\pm \hat{C}_3^2 \mathbf{Q}_0$ 组成的六边形, 由此可得其周期为 $\lambda = \frac{aa'}{\sqrt{a^2 + a'^2 - 2aa' \cos \delta \theta}} \approx \frac{a}{\sqrt{\delta^2 + \delta \theta^2}}$, 这里 a' 和 a 是上下层的晶格常数, $\delta \equiv 1 - a'/a \ll 1$, 而 $\delta \theta \ll 1$ 是层间转角 θ 与 0 或 $\pi/3$ 的差别.

$\mathbf{Q}_0 = 0$ 对应两层 TMDs 的晶格完全匹配的情况, 即晶格基矢满足 $\mathbf{a}_1 = \mathbf{a}'_1$ 和 $\mathbf{a}_2 = \mathbf{a}'_2$, 这通常出现在两层 TMDs 为同种材料的同质结并且它们的相对转角 θ 严格等于 0° 或 60° 时. 此时的层间耦合可写成:

$$\begin{aligned}
 \langle \psi_{\nu, \mathbf{K}+\mathbf{q}} | \hat{H}_T | \psi_{\nu', \mathbf{K}'+\mathbf{q}'} \rangle_{\text{R}} &= \\
 \delta_{\mathbf{q}', \mathbf{q}} [t_2^2 f_0(\mathbf{r}_0) + \beta_{\text{VV}'}^{\text{R}} q_+ f_-(\mathbf{r}_0) + \gamma_{\text{VV}'}^{\text{R}} q_- f_+(\mathbf{r}_0)] &, \\
 \langle \psi_{\nu, \mathbf{K}+\mathbf{q}} | \hat{H}_T | \psi_{\nu', -\mathbf{K}'+\mathbf{q}'} \rangle_{\text{H}} &= \\
 \delta_{\mathbf{q}', \mathbf{q}} [t_2^{-2} f_-(\mathbf{r}_0) + \beta_{\text{VV}'}^{\text{H}} q_+ f_+(\mathbf{r}_0) + \gamma_{\text{VV}'}^{\text{H}} q_- f_0(\mathbf{r}_0)] &. \quad (13)
 \end{aligned}$$

可定义:

$$\begin{aligned}
 f_0(\mathbf{r}_0) &\equiv 1 + e^{i\mathbf{B}_1 \cdot \mathbf{r}_0} + e^{i\mathbf{B}_2 \cdot \mathbf{r}_0}, \\
 f_{\pm}(\mathbf{r}_0) &\equiv 1 + e^{i\mathbf{B}_1 \cdot \mathbf{r}_0} e^{\pm i2\pi/3} + e^{i\mathbf{B}_2 \cdot \mathbf{r}_0} e^{\pm i4\pi/3}, \quad (14)
 \end{aligned}$$

式中 $f_{0,\pm}(\mathbf{r}_0)$ 随 \mathbf{r}_0 的变化来源于 (9) 式中 $\kappa = \mathbf{K}$, $\hat{C}_3 \mathbf{K}$ 和 $\hat{C}_3^2 \mathbf{K}$ 对应于 $T_{n, \mathbf{K}+\mathbf{q}}^{n', \tau' \mathbf{K}'+\mathbf{q}}(\kappa + \mathbf{q}) e^{i\kappa \cdot \mathbf{r}_0}$ 项之间的干涉. 如图 1(c) 所示, 当 \mathbf{r}_0 取一个原胞内的不同值时 $|f_0(\mathbf{r}_0)|$, $|f_+(\mathbf{r}_0)|$ 和 $|f_-(\mathbf{r}_0)|$ 可在 0—3 之间剧烈变化, 导致层间耦合也大幅变化. 层间耦合同时也包含随 \mathbf{q} 线性变化的项, 虽然通常情况下零阶项占主导, 但是在某些特定的双层结构中层间耦合只包含 \mathbf{q} 的一阶项的贡献. 例如 0° 转角下最稳定的 3R 型 (对应 $\mathbf{r}_0 = (\mathbf{a}_1 + \mathbf{a}_2)/3$ 或 $2(\mathbf{a}_1 + \mathbf{a}_2)/3$ 的 R 类堆叠) 有 $f_0(\mathbf{r}_0) = 0$, 它的层间耦合的 \mathbf{q} 零阶项消失, 同时 $f_-(\mathbf{r}_0) = 3$ 或 $f_+(\mathbf{r}_0) = 3$, 代表 \mathbf{q} 一阶项贡献最强.

3 局域化的布洛赫波包之间的层间耦合形式

本节从局域的角度来看待莫尔超晶格中的电子. 图 2(a) 所示为一个典型的莫尔超晶格以及对

应的超原胞, 其周期 λ 通常在几纳米到十几纳米, 远大于单层 TMDs 的晶格常数 $a \approx 3 \text{ \AA}$. 在一个范围小于 λ 同时又大于 a 的局部区域内, 双层 TMDs 的原子排布方式与一个晶格匹配的双层结构几乎相同 (见图 2(a)). 如果有一个局域在该区域的电子

波包, 直觉上其性质应与某个特定层间平移下的晶格匹配双层结构中的电子接近, 这正是文献 [11–15] 采用的处理方法. 需指出的是, 层间平移在晶格匹配的双层 TMDs 中为一不随位置变化的常数, 而在莫尔超晶格中则随位置缓慢变化. 如图 2(b) 所示,

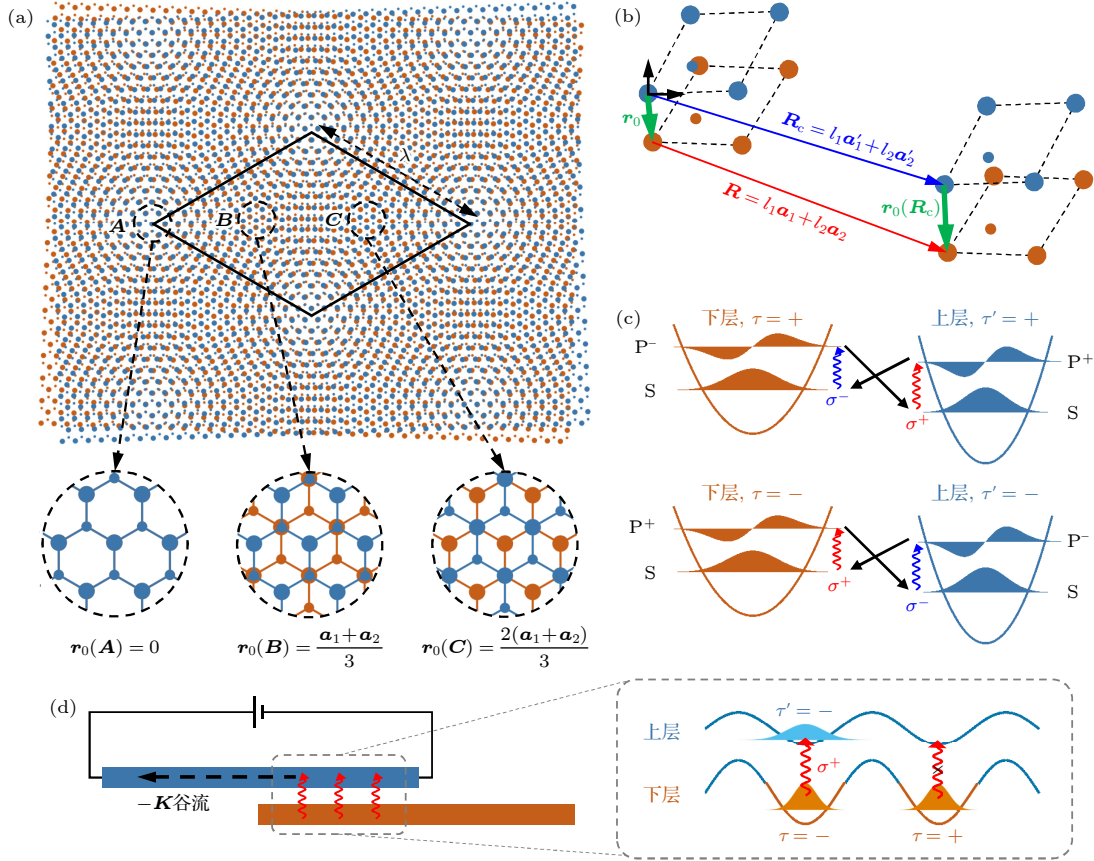


图 2 莫尔超晶格中局域化的布洛赫波包之间的层间耦合 (a) 层间转角接近 0° 下周期为 λ 的莫尔超晶格示意图, 菱形为一个超原胞, \mathbf{A} , \mathbf{B} , \mathbf{C} 为三个范围小于 λ 同时又大于单层晶格常数 a 的局部区域, 其内部的原子排布与层间平移分别为 $\mathbf{r}_0(\mathbf{A}) = 0$, $\mathbf{r}_0(\mathbf{B}) = (\mathbf{a}_1 + \mathbf{a}_2)/3$ 和 $\mathbf{r}_0(\mathbf{C}) = 2(\mathbf{a}_1 + \mathbf{a}_2)/3$, 其内部的原子排布与层间平移分别为 $\mathbf{r}_0(\mathbf{A}) = 0$, $\mathbf{r}_0(\mathbf{B}) = (\mathbf{a}_1 + \mathbf{a}_2)/3$ 和 $\mathbf{r}_0(\mathbf{C}) = 2(\mathbf{a}_1 + \mathbf{a}_2)/3$, 分别. (b) 层间平移 $\mathbf{r}_0(\mathbf{R}_c)$ 随区域中心位置 \mathbf{R}_c 的变化, 其满足 $\mathbf{r}_0(\mathbf{R}_c) = \mathbf{r}_0 + \mathbf{R} - \mathbf{R}_c$. (c) 通过外场调控两个局域在 \mathbf{B} 处的 S 型波包之间的层间耦合, 其中黑色直线箭头代表与 S 型波包有关的非零层间耦合, 红 (蓝) 色波浪箭头代表用 σ^+ (σ^-) 圆偏振光场实现同一层内部的 S 型到 \mathbf{P}^+ (\mathbf{P}^-) 型波包的激发. 上下层波包的相对能量可通过施加层间电压来调节. (d) 在双层系统中, 可通过施加 σ^+ 圆偏振光将下层中 $-\mathbf{K}$ 谷的 S 型波包通过层间跃迁移动到上层, 而 $+\mathbf{K}$ 谷则被留在下层. 波包的局域化来源于上下层接触区域形成的莫尔超晶格势, 我们设下层感受到的势阱较深因此基态波包无法自由运动, 而上层感受到的势阱较浅因此基态波包可在层内运动, 它们在一个面内电场的作用下可产生谷流

Fig. 2. The interlayer coupling between two localized Bloch wavepackets in the moiré superlattice. (a) Schematic illustration of a moiré superlattice with a period λ when the twist angle is close to 0° . The diamond shape corresponds to a supercell. \mathbf{A} , \mathbf{B} and \mathbf{C} are three local regions with spatial extensions smaller than λ but larger than the monolayer lattice constant a , whose atomic registrations are close to lattice-matched bilayer structures with interlayer translations $\mathbf{r}_0(\mathbf{A}) = 0$, $\mathbf{r}_0(\mathbf{B}) = (\mathbf{a}_1 + \mathbf{a}_2)/3$ and $\mathbf{r}_0(\mathbf{C}) = 2(\mathbf{a}_1 + \mathbf{a}_2)/3$, respectively. (b) The variation of the interlayer translation $\mathbf{r}_0(\mathbf{R}_c)$ with the local region center \mathbf{R}_c , which satisfies $\mathbf{r}_0(\mathbf{R}_c) = \mathbf{r}_0 + \mathbf{R} - \mathbf{R}_c$. (c) Tuning the interlayer coupling between two S-type wavepackets localized at \mathbf{B} with external fields. Black straight arrows indicate the nonzero interlayer couplings related to the S-type wavepackets, while red (blue) wavy arrows stand for σ^+ (σ^-) circularly-polarized optical fields which can excite an S-type to a \mathbf{P}^+ -type (\mathbf{P}^- -type) wavepacket. The relative energy position between the upper- and lower-layer wavepackets can be tuned by an interlayer bias. (d) A schematic illustration of how to move the $-\mathbf{K}$ valley S-type wavepackets from the lower- to upper-layer by applying a σ^+ circularly-polarized optical field. Meanwhile the $+\mathbf{K}$ valley wavepackets remain in the lower-layer. The wavepacket is localized by the moiré potential at the region where two layers are in contact. We assume that the carriers in the lower-layer feel deep potential wells thus cannot move, while those in the upper-layer feel shallow potential wells thus can move under the effect of an in-plane electric field, which results in a valley current.

坐标原点处的层间平移 \mathbf{r}_0 与位置 $\mathbf{R}_c = l'_1 \mathbf{a}'_1 + l'_2 \mathbf{a}'_2$ 处的层间平移 $\mathbf{r}_0(\mathbf{R}_c)$ 之间满足^[11] $\mathbf{r}_0(\mathbf{R}_c) = \mathbf{r}_0 + \mathbf{R} - \mathbf{R}_c$, 这里 $\mathbf{r}_0 + \mathbf{R} = \mathbf{r}_0 + l_1 \mathbf{a}_1 + l_2 \mathbf{a}_2$ 是 \mathbf{R}' 附近下层 TMDs 中某个金属原子位置. 于是

$$\begin{aligned} \mathbf{B}_{1,2} \cdot \mathbf{r}_0(\mathbf{R}_c) &= -\mathbf{B}_{1,2} \cdot \mathbf{R}_c + \mathbf{B}_{1,2} \cdot \mathbf{r}_0 \\ &= \mathbf{b}_{1,2} \cdot \mathbf{R}_c + \mathbf{B}_{1,2} \cdot \mathbf{r}_0 \end{aligned} \quad (15)$$

为 \mathbf{R}_c 的线性函数. 这里利用 $\mathbf{b}_{1,2} = \mathbf{B}'_{1,2} - \mathbf{B}_{1,2}$.

下文从波包的函数形式出发结合第 2 节得到的布洛赫波之间的层间耦合 ((12) 式), 来推导不同层的布洛赫波包之间的层间耦合, 并分析其与 (13) 式的异同. 考虑一外势场导致的电子局域化, 这样的势场可以来源于扫描隧穿显微镜的探针或是杂质电荷等. 将势场近似为二维简谐势, 于是电子基态为 S 型高斯波包, 而第一激发态为 \mathbf{p}^\pm 型高斯波包, 它们在下层 TMDs 中的波函数分别为

$$\begin{aligned} S_{n,\tau}(\mathbf{r}) &= \sqrt{\frac{4\pi}{A}} w \sum_{\mathbf{q}} \psi_{n,\tau \mathbf{K}+\mathbf{q}}(\mathbf{r}) e^{-\frac{w^2 \mathbf{q}^2}{2} - i\mathbf{q} \cdot \mathbf{R}_c}, \\ P_{n,\tau}^\pm(\mathbf{r}) &= \sqrt{\frac{4\pi}{A}} w^2 \sum_{\mathbf{q}} \psi_{n,\tau \mathbf{K}+\mathbf{q}}(\mathbf{r}) q_\pm e^{-\frac{w^2 \mathbf{q}^2}{2} - i\mathbf{q} \cdot \mathbf{R}_c}, \end{aligned} \quad (16)$$

其中 w 是波包在实空间的展宽, A 是双层 TMDs 系统的面积, \mathbf{R}_c 为外势场的最低位置或波包中心. 波包在动量空间的分布中心则位于布洛赫函数的能量极值点 $\tau \mathbf{K}$. 对于上层 TMDs 中展宽为 w' 的波包, 其波函数可类似写出. 以一对谷赝自旋为

$\tau = \tau' = +$ (R 类堆叠) 或 $\tau = -\tau' = +$ (H 类堆叠) 的价带电子为例, 利用 (12) 式和 (15) 式可得两个基态 S 型波包之间的层间耦合形式:

$$\begin{aligned} &\langle S_{v,+} | \hat{H}_T | S_{v',+} \rangle_{\mathbf{R}} \\ &= \frac{\bar{w}^2}{ww'} e^{-\frac{w^2 \mathbf{Q}_0^2}{4} - i\mathbf{Q}_0 \cdot \mathbf{R}_c} \tilde{t}_2^2(\mathbf{Q}_0) f_0(\mathbf{r}_0(\mathbf{R}_c)), \\ &\langle S_{v,+} | \hat{H}_T | S_{v',-} \rangle_{\mathbf{H}} \\ &= \frac{\bar{w}^2}{ww'} e^{-\frac{w^2 \mathbf{Q}_0^2}{4} - i\mathbf{Q}_0 \cdot \mathbf{R}_c} \tilde{t}_2^{-2}(\mathbf{Q}_0) f_-(\mathbf{r}_0(\mathbf{R}_c)). \end{aligned} \quad (17)$$

式中, $\bar{w} \equiv \sqrt{2w^2 w'^2 / (w^2 + w'^2)}$, $\tilde{t}_2^2(\mathbf{Q}_0) \equiv t_2^2 + \frac{\bar{w}^2}{2w'^2} \gamma_{\mathbf{v}\mathbf{v}'}^{\mathbf{R}} Q_{0,-} - \frac{\bar{w}^2}{2w^2} \beta_{\mathbf{v}\mathbf{v}'}^{\mathbf{R}} Q_{0,+}$, $\tilde{t}_2^{-2}(\mathbf{Q}_0) \equiv t_2^{-2}(\mathbf{Q}_0) - \frac{\bar{w}^2 \gamma_{\mathbf{v}\mathbf{v}'}^{\mathbf{H}} Q_{0,-}}{2w^2} - \frac{\bar{w}^2 \beta_{\mathbf{v}\mathbf{v}'}^{\mathbf{H}} Q_{0,+}}{2w^2}$. 将 (17) 式与晶格匹配时的 (13) 式对比, 可看出两者在 $\mathbf{q}' = \mathbf{q} = 0$ 时非常接近, 均随波包中心 \mathbf{R}_c 处的层间平移 $\mathbf{r}_0(\mathbf{R}_c)$ 剧烈变化 (见图 1(c)). 不同之处在于因子 $\frac{\bar{w}^2}{ww'} e^{-\frac{w^2 \mathbf{Q}_0^2}{4} - i\mathbf{Q}_0 \cdot \mathbf{R}_c}$, 其来自于动量中心分别位于 $\pm \mathbf{K}'$ 和 \mathbf{K} 的两个波包的波函数交叠. 当两个波包的实空间平均展宽 \bar{w} 大于莫尔超晶格周期 λ 时, 其动量空间平均展宽 $1/\bar{w}$ 小于它们动量中心的距离 $|\mathbf{Q}_0|$, 导致了波函数交叠随 \bar{w} 的高斯型衰减; 而波包的动量中心不在同一位置则产生了相位因子 $e^{-i\mathbf{Q}_0 \cdot \mathbf{R}_c}$.

此外, 两个布洛赫态的层间耦合中的 \mathbf{q} 一阶项 (见 (12) 式) 使得 S 型和 \mathbf{p}^\pm 型波包之间也存在有限大小的层间耦合:

$$\begin{aligned} \langle P_{v,+}^- | \hat{H}_T | S_{v',+} \rangle_{\mathbf{R}} &= \frac{\bar{w}^4}{w^2 w'^2} e^{-\frac{w^2 \mathbf{Q}_0^2}{4} - i\mathbf{Q}_0 \cdot \mathbf{R}_c} \left(\frac{\gamma_{\mathbf{v}\mathbf{v}'}^{\mathbf{R}}}{w'} - \frac{w' Q_{0,+}}{2} t_2^2 \right) f_+(\mathbf{r}_0(\mathbf{R}_c)), \\ \langle S_{v,+} | \hat{H}_T | P_{v',+}^- \rangle_{\mathbf{R}} &= \frac{\bar{w}^4}{w^2 w'^2} e^{-\frac{w^2 \mathbf{Q}_0^2}{4} - i\mathbf{Q}_0 \cdot \mathbf{R}_c} \left(\frac{\beta_{\mathbf{v}\mathbf{v}'}^{\mathbf{R}}}{w} + \frac{w Q_{0,-}}{2} t_2^2 \right) f_-(\mathbf{r}_0(\mathbf{R}_c)), \\ \langle P_{v,+}^+ | \hat{H}_T | S_{v',+} \rangle_{\mathbf{R}} &= \frac{\bar{w}^4}{w^2 w'^2} e^{-\frac{w^2 \mathbf{Q}_0^2}{4} - i\mathbf{Q}_0 \cdot \mathbf{R}_c} \left(\frac{\beta_{\mathbf{v}\mathbf{v}'}^{\mathbf{R}}}{w'} - \frac{w' Q_{0,-}}{2} t_2^2 \right) f_-(\mathbf{r}_0(\mathbf{R}_c)), \\ \langle S_{v,+} | \hat{H}_T | P_{v',+}^+ \rangle_{\mathbf{R}} &= \frac{\bar{w}^4}{w^2 w'^2} e^{-\frac{w^2 \mathbf{Q}_0^2}{4} - i\mathbf{Q}_0 \cdot \mathbf{R}_c} \left(\frac{\gamma_{\mathbf{v}\mathbf{v}'}^{\mathbf{R}}}{w} + \frac{w Q_{0,-}}{2} t_2^2 \right) f_+(\mathbf{r}_0(\mathbf{R}_c)), \\ \langle P_{v,+}^- | \hat{H}_T | S_{v',-} \rangle_{\mathbf{H}} &= \frac{\bar{w}^4}{w^2 w'^2} e^{-\frac{w^2 \mathbf{Q}_0^2}{4} - i\mathbf{Q}_0 \cdot \mathbf{R}_c} \left(\frac{\gamma_{\mathbf{v}\mathbf{v}'}^{\mathbf{H}}}{w'} - \frac{w' Q_{0,+}}{2} t_2^{-2} \right) f_0(\mathbf{r}_0(\mathbf{R}_c)), \\ \langle S_{v,+} | \hat{H}_T | P_{v',-}^- \rangle_{\mathbf{H}} &= \frac{\bar{w}^4}{w^2 w'^2} e^{-\frac{w^2 \mathbf{Q}_0^2}{4} - i\mathbf{Q}_0 \cdot \mathbf{R}_c} \left(\frac{\beta_{\mathbf{v}\mathbf{v}'}^{\mathbf{H}}}{w} + \frac{w Q_{0,-}}{2} t_2^{-2} \right) f_0(\mathbf{r}_0(\mathbf{R}_c)), \\ \langle P_{v,+}^+ | \hat{H}_T | S_{v',-} \rangle_{\mathbf{H}} &= \frac{\bar{w}^4}{w^2 w'^2} e^{-\frac{w^2 \mathbf{Q}_0^2}{4} - i\mathbf{Q}_0 \cdot \mathbf{R}_c} \left(\frac{\beta_{\mathbf{v}\mathbf{v}'}^{\mathbf{H}}}{w'} - \frac{w' Q_{0,-}}{2} t_2^{-2} \right) f_+(\mathbf{r}_0(\mathbf{R}_c)), \\ \langle S_{v,+} | \hat{H}_T | P_{v',-}^+ \rangle_{\mathbf{H}} &= \frac{\bar{w}^4}{w^2 w'^2} e^{-\frac{w^2 \mathbf{Q}_0^2}{4} - i\mathbf{Q}_0 \cdot \mathbf{R}_c} \left(\frac{\gamma_{\mathbf{v}\mathbf{v}'}^{\mathbf{H}}}{w} + \frac{w Q_{0,-}}{2} t_2^{-2} \right) f_-(\mathbf{r}_0(\mathbf{R}_c)). \end{aligned} \quad (18)$$

由 (18) 式可以看出, S 型到 P^\pm 型波包之间的层间耦合强度随展宽 w 或 w' 的减小而迅速增大, 而且它随 $\mathbf{r}_0(\mathbf{R}_c)$ 的变化与两个 S 型波包的情况完全不同. 由图 1(c) 可知, 当选择波包中心 \mathbf{R}_c 使得两个 S 型波包的层间耦合最强时, S 和 P^\pm 型波包之间的层间耦合必然为 0; 反之如果将 \mathbf{R}_c 选在两个 S 型波包的层间耦合为 0 的位置, 那么必然有 S 和 P^+ 型 (或 S 和 P^- 型) 波包之间的层间耦合达到最强. 波包之间的层间耦合为 0 或最强的情况往往出现在具有 \hat{C}_3 对称性的区域, 即图 2(a) 中的 A , B 或 C , 在这些位置上下层的旋转中心在面内重合. 局域在 A , B 或 C 的 S 和 P^\pm 型波包同样满足 \hat{C}_3 对称性, 其 C_3 量子数包括来自布洛赫函数 $\psi_{n,\tau\mathbf{K}}$ 和波包的包络两部分的贡献. 需要注意的是, $\psi_{n,\tau\mathbf{K}}$ 的 C_3 量子数与旋转中心的选择 M, X 或 h 相关 (见表 1), 当固定上层 TMDs 的旋转中心为 M' 时, 与之重合的下层旋转中心在 A , B 或 C 分别为 M, h 和 X. 相应的波包 C_3 量子数总结列于表 2, 显然, 只有在上下层的波包具有相同 C_3 量子数时, 它们之间的层间耦合才不为 0.

上述性质使得两个 S 型波包之间的层间耦合可以通过外场来调控. 在晶格匹配的 R 类双层 TMDs 中, 最稳定的 3R 结构对应于层间平移 $\mathbf{r}_0 = (\mathbf{a}_1 + \mathbf{a}_2)/3$ 或 $2(\mathbf{a}_1 + \mathbf{a}_2)/3$; 而在接近 0° 转角的双层 TMDs 莫尔超晶格中, $\pm\mathbf{K}$ 谷的空穴感受到一个莫尔超晶格势, 其势能的最低点也是出现在层间平移 $\mathbf{r}_0(\mathbf{B}) = (\mathbf{a}_1 + \mathbf{a}_2)/3$ 或者 $\mathbf{r}_0(\mathbf{C}) = 2(\mathbf{a}_1 + \mathbf{a}_2)/3$ 的高对称位置^[14,15,47](见图 2(a)). 在价带边位于 $\pm\mathbf{K}$ 的双层 WSe_2 中^[48], 考虑被局域在 B 处的空穴波包, 根据表 2 的对称性知

$$\begin{aligned} \langle S_{v,+} | \hat{H}_T | S_{v',+} \rangle_{\mathbf{R}} &= \langle S_{v,+} | \hat{H}_T | P_{v',+}^- \rangle_{\mathbf{R}} \\ &= \langle P_{v,+}^+ | \hat{H}_T | S_{v',+} \rangle_{\mathbf{R}} = 0, \end{aligned}$$

同时 $\langle P_{v,+}^- | \hat{H}_T | S_{v',+} \rangle_{\mathbf{R}}$ 和 $\langle S_{v,+} | \hat{H}_T | P_{v',+}^+ \rangle_{\mathbf{R}}$ 达到最大耦合强度. 施加一个 σ^+ 面内圆偏振的光场可以在上层 WSe_2 中将谷指标为 $\tau' = +$ 的 S 型波包耦合到 P^+ 型波包 (或在下层 WSe_2 中将 $\tau = -$ 的 S 型波包耦合到 P^+ 型波包), 从而间接产生两个 S 型波包之间的层间耦合, 见图 2(c). 同时, 施加一个层间电压可以改变上下层波包的相对能量. 于是通过选择合适的 σ^+ 光场频率, 可以让 $\tau = \tau' = +$ 的 S 型波包之间的层间耦合处于共振增强, 而 $\tau = \tau' = -$ 的 S 型波包之间的层间耦合则是远失谐因而很弱. 反之, 将光场圆偏振变为 σ^- 同时保持频率不变, 则可以让 $\tau = \tau' = -$ 的 S 型波包的层间耦合为共振增强而 $\tau = \tau' = +$ 变成远失谐. 因此, 通过调节激光的圆偏振和频率, 可以选择性地打开或关闭特定谷的基态波包层间耦合, 从而实现谷赝自旋的可控层间输运. 如图 2(d) 所示, 考虑一个双层系统, 其中上下层接触区域形成了莫尔超晶格势, 载流子被局域在超晶格势最低点处形成基态 S 型波包. 设下层感受到的势阱较深因此基态波包无法移动, 而上层感受到的势阱较浅因此基态波包可在近邻势阱间发生跃迁. 通过图 2(c) 所示的过程, 可施加 σ^+ 圆偏振光将下层中 $-\mathbf{K}$ 谷的基态波包通过层间跃迁移动到上层, 同时 $+\mathbf{K}$ 谷留在下层不动. 一个面内电场可使得位于上层的 $-\mathbf{K}$ 谷载流子产生定向移动, 从而产生谷流. 另外, 也可以施加一面内静电场来耦合同一层内的 S 型与 P^\pm 型波包, 此时不同层的两个 S 型波包之间的层间耦合携带一个由面内电

表 2 局域在图 2(a) 中 A , B 和 C 区域的 S 和 P^\pm 型波包的 C_3 量子数, 其中旋转中心始终取为上层 TMDs 晶格的过渡金属 M'. 这里只显示了谷指标为 $\tau = +$ 和 $\tau' = +$ 的情况, 而 $\tau = -$ 和 $\tau' = -$ 可通过时间反演得到

Table 2. The C_3 quantum numbers of S- and P^\pm -type wavepackets localized at A , B and C in Fig. 2(a). Here we set the rotation center as a transition-metal site M' in the upper TMDs layer. Only those with the valley indices $\tau = +$ and $\tau' = +$ are shown, while the cases for $\tau = -$ and $\tau' = -$ can be obtained by a time reversal.

能带	波包位置	上层 ($\tau' = +$)			下层 ($\tau = +$)		
		S'	P'+	P'-	S	P+	P-
c	A	0	+1	-1	0	+1	-1
	B	0	+1	-1	+1	-1	0
	C	0	+1	-1	-1	0	+1
v	A	-1	0	+1	-1	0	+1
	B	-1	0	+1	0	+1	-1
	C	-1	0	+1	+1	-1	0

场方向决定的相位, 这可导致层间激子发光性质的显著改变^[47].

4 层间耦合导致的电子在不同层的再分配

层间耦合效应的另一个效果是导致基态电子在两层中的不平衡分布, 从而在每一层中产生非零净电荷密度. 如图 3(a) 所示, 半导体 TMDs 或绝缘体 hBN 的费米面 E_F 位于导带和价带之间的能隙中, 因此两层的价带均被电子占据而导带均无占据. 引入层极化算符 $\hat{P} \equiv \frac{1}{2} \sum_{n,\mathbf{k}} |\psi_{n,\mathbf{k}}\rangle \langle \psi_{n,\mathbf{k}}| - \frac{1}{2} \sum_{n',\mathbf{k}} |\psi_{n',\mathbf{k}}\rangle \langle \psi_{n',\mathbf{k}}|$, 其期望值对应从上层转移到下层的电子数. 当不存在层间耦合时, 所有被占据电子的基态 $|\Psi\rangle$ 由低于费米面的 $\psi_{n,\mathbf{k}}$ 和 $\psi_{n',\mathbf{k}}$ 组成, 此时 $\langle \Psi | \hat{P} | \Psi \rangle = 0$, 即不存在电子的层间转移. 当引入层间耦合效应时, 为简单起见我们只考虑导带和价带: 下层的价带 v 和上层的导带 c' 之间存在层间耦合 $t_{vc',\mathbf{k}} \equiv \langle \psi_{v,\mathbf{k}} | \hat{H}_T | \psi_{c',\mathbf{k}} \rangle$, 而下层的

导带 c 和上层的价带 v' 之间存在层间耦合 $t_{cv',\mathbf{k}} \equiv \langle \psi_{c,\mathbf{k}} | \hat{H}_T | \psi_{v',\mathbf{k}} \rangle$, 它们带来的层间杂化可产生有限大小的电子层间转移; 另一方面上下层的价带都被电子占满 (导带上无电子占据), 因此价带之间 (和导带之间) 的层间耦合不会导致电子层间转移, 可不考虑. 通常层间耦合的强度远远小于能隙, 二阶微扰下价带波函数变为

$$|\tilde{\psi}_{v,\mathbf{k}}\rangle \approx \left(1 - \frac{1}{2} \left| \frac{t_{vc',\mathbf{k}}}{E_{v,\mathbf{k}} - E_{c',\mathbf{k}}} \right|^2\right) |\psi_{v,\mathbf{k}}\rangle + \frac{t_{vc',\mathbf{k}}^*}{E_{v,\mathbf{k}} - E_{c',\mathbf{k}}} |\psi_{c',\mathbf{k}}\rangle$$

和

$$|\tilde{\psi}_{v',\mathbf{k}}\rangle \approx \left(1 - \frac{1}{2} \left| \frac{t_{cv',\mathbf{k}}}{E_{v',\mathbf{k}} - E_{c,\mathbf{k}}} \right|^2\right) |\psi_{v',\mathbf{k}}\rangle + \frac{t_{cv',\mathbf{k}}}{E_{v',\mathbf{k}} - E_{c,\mathbf{k}}} |\psi_{c,\mathbf{k}}\rangle,$$

于是被占据电子的基态 $|\tilde{\Psi}\rangle$ 由 $\tilde{\psi}_{v,\mathbf{k}}$ 和 $\tilde{\psi}_{v',\mathbf{k}}$ 组成. 此时层极化密度一般为有限大小, 即

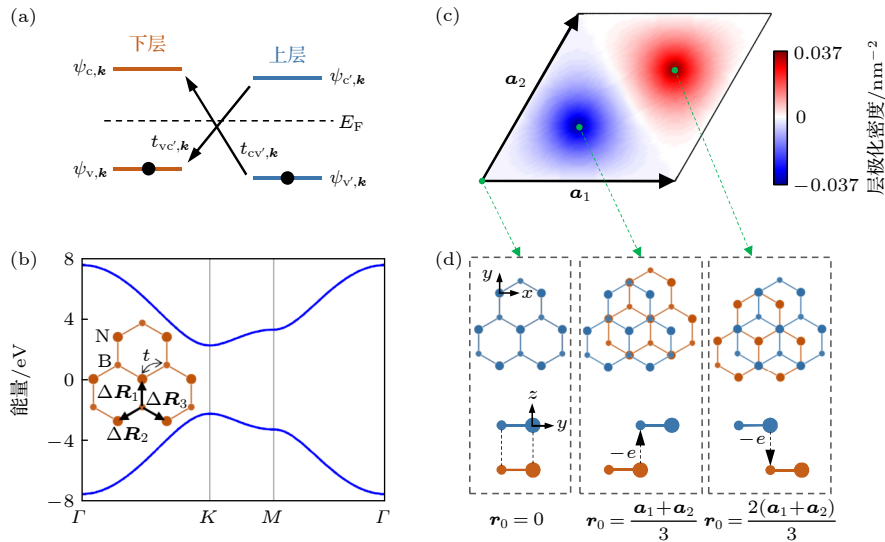


图 3 电子在层间的再分配效应 (a) 双层半导体 TMDs 或绝缘体 hBN 的费米面 E_F 示意图; (b) 单层 hBN 的 p_z 轨道紧束缚能带, 插图中 $\Delta\mathbf{R}_{1,2,3}$ 是 hBN 晶格的 3 个最近邻位移矢量, t 是最近邻跃迁强度; (c) 计算得到的双层 hBN 层极化密度随层间平移 \mathbf{r}_0 的变化; (d) 三种不同 \mathbf{r}_0 时的双层 hBN 原子排布, 上半部为上方视角, 下半部为侧方视角, 虚线箭头代表从 N 向 B 原子的电子转移, 其中蓝 (橙) 色大圆圈代表上 (下) 层的 N 原子, 蓝 (橙) 色小圆圈代表上 (下) 层的 B 原子

Fig. 3. The interlayer charge redistribution effect: (a) Diagram of the Fermi level E_F of the bilayer semiconductor TMDs or insulator hBN; (b) the conduction and valence bands obtained from the p_z -orbital tight-binding model for the monolayer hBN, in the inset, $\Delta\mathbf{R}_{1,2,3}$ corresponds to the three nearest-neighbor displacement vectors, and t is the nearest-neighbor hopping; (c) the calculated layer-polarization density in bilayer hBN as a function of the interlayer translation \mathbf{r}_0 ; (d) the atomic registries of bilayer hBN under three different \mathbf{r}_0 , the upper (lower) parts correspond to the top-view (side-view). The dashed arrows denote the electron redistribution from N to B atoms. Here the large blue (orange) circles stand for the N atoms in the upper (lower) layer, small blue (orange) circles are the B atoms in the upper (lower) layer.

$$\begin{aligned} \rho &\equiv \frac{1}{A} \langle \tilde{\Psi} | \hat{P} | \tilde{\Psi} \rangle \\ &= \frac{1}{(2\pi)^2} \int d\mathbf{k} \left(\frac{|t_{cv',\mathbf{k}}|^2}{(E_{v',\mathbf{k}} - E_{c,\mathbf{k}})^2} - \frac{|t_{vc',\mathbf{k}}|^2}{(E_{v,\mathbf{k}} - E_{c',\mathbf{k}})^2} \right). \end{aligned} \quad (19)$$

以一个层间平移为 \mathbf{r}_0 的 R 类双层 hBN 系统为例, 可计算得到层间耦合导致的层极化密度随 \mathbf{r}_0 的变化. 单层 hBN 可以用 B 和 N 原子的 p_z 轨道紧束缚模型描述^[49], 其导带和价带布洛赫函数分别写成 $\psi_{c,\mathbf{k}}(\mathbf{r}) = \beta_{1,\mathbf{k}}\psi_{\mathbf{k}}^B(\mathbf{r}) + \beta_{2,\mathbf{k}}\psi_{\mathbf{k}}^N(\mathbf{r})$ 和 $\psi_{v,\mathbf{k}}(\mathbf{r}) = \beta_{2,\mathbf{k}}^*\psi_{\mathbf{k}}^B(\mathbf{r}) - \beta_{1,\mathbf{k}}^*\psi_{\mathbf{k}}^N(\mathbf{r})$, 这里 $\psi_{\mathbf{k}}^{B/N}(\mathbf{r})$ 为 B/N 原子 p_z 轨道的布洛赫和 $\psi_{\mathbf{k}}^B(\mathbf{r}) = \sum_{\mathbf{R}} \frac{e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{R}}}{\sqrt{N}} p_z^B(\mathbf{r} - \mathbf{R})$, $\psi_{\mathbf{k}}^N(\mathbf{r}) = \sum_{\mathbf{R}} \frac{e^{i\mathbf{k}\cdot(\mathbf{R}+\Delta\mathbf{R}_1)}}{\sqrt{N}} p_z^N(\mathbf{r} - \mathbf{R} - \Delta\mathbf{R}_1)$. 在紧束缚近似下, $(\beta_{1,\mathbf{k}}, \beta_{2,\mathbf{k}})^T$ 为下列 2×2 矩阵能量较高的本征态:

$$\hat{H}_{\text{hBN}} = \begin{pmatrix} \Delta_{\text{BN}}/2 & t_{\mathbf{k}} \\ t_{\mathbf{k}}^* & -\Delta_{\text{BN}}/2 \end{pmatrix}, \quad (20)$$

其中 $\Delta_{\text{BN}} \approx 4.5$ eV 是 B 和 N 的 p_z 轨道之间的能量差, $t_{\mathbf{k}} \equiv t(e^{i\mathbf{k}\cdot\Delta\mathbf{R}_1} + e^{i\mathbf{k}\cdot\Delta\mathbf{R}_2} + e^{i\mathbf{k}\cdot\Delta\mathbf{R}_3})$, $\Delta\mathbf{R}_{1,2,3}$ 是 3 个最近邻 B 和 N 原子之间的位移, $t \approx 2.4$ eV 是最近邻跃迁强度^[49]. 由此得到的单层 hBN 导带和价带能量见图 3(b).

双层 hBN 的层间耦合形式与 TMDs 类似. 对于晶格匹配的 R 类双层 hBN, 近似取不同层的两个原子的 p_z 轨道之间的层间耦合形式为

$$\begin{aligned} T_B^{B'}(\mathbf{k}) &= T_N^{N'}(\mathbf{k}) = T_B^{N'}(\mathbf{k}) = T_N^{B'}(\mathbf{k}) \\ &= t_{\text{inter}} \left(1 + |\mathbf{k}|^2 \sigma^2 \right)^{-3/2}, \end{aligned}$$

于是可推导出导带和价带之间的层间耦合:

$$\begin{aligned} t_{vc',\mathbf{k}} &= t_{\text{inter}} \sum_{\mathbf{G}} \frac{\beta_{2,\mathbf{k}}^2 e^{i\mathbf{G}\cdot(\mathbf{r}_0 - \Delta\mathbf{R}_1)} - \beta_{1,\mathbf{k}}^2 e^{i\mathbf{G}\cdot(\mathbf{r}_0 + \Delta\mathbf{R}_1)}}{(1 + |\mathbf{k} + \mathbf{G}|^2 \sigma^2)^{3/2}}, \\ t_{cv',\mathbf{k}} &= t_{\text{inter}} \sum_{\mathbf{G}} \frac{\beta_{2,\mathbf{k}}^* e^{i\mathbf{G}\cdot(\mathbf{r}_0 + \Delta\mathbf{R}_1)} - \beta_{1,\mathbf{k}}^* e^{i\mathbf{G}\cdot(\mathbf{r}_0 - \Delta\mathbf{R}_1)}}{(1 + |\mathbf{k} + \mathbf{G}|^2 \sigma^2)^{3/2}}. \end{aligned} \quad (21)$$

在层间跃迁参数 $t_{\text{inter}} = 0.6$ eV, 衰减特征长度 $\sigma = 1$ Å 下, 计算得到的层极化密度随 \mathbf{r}_0 的变化见图 3(c). 可以看到, $\mathbf{r}_0 = (\mathbf{a}_1 + \mathbf{a}_2)/3$ 和 $2(\mathbf{a}_1 + \mathbf{a}_2)/3$ 时层极化最大且符号相反, 它们恰好对应双层 hBN 最稳定的 AB 和 BA 两种构型; 而 $\mathbf{r}_0 = 0$ 的 AA 构型下, 上下层互为镜像对称, 层极化密度为 0 (见图 3(d)); 其余 \mathbf{r}_0 下的层极化密度则取中间值. 不

同参数下, 层极化密度的大小随之变化, 但其随 \mathbf{r}_0 变化的函数形状基本固定. 非零的层极化代表不同层中有非零且符号相反的净电荷密度, 即存在一个垂直平面的电偶极矩. 在莫尔超晶格中, $\mathbf{r}_0(\mathbf{R}_c)$ 随位置 \mathbf{R}_c 缓慢变化, 因此不同区域有着不同的电偶极密度, 这使得其中的电子和空穴感受到一个随位置变化的静电势, 这正是莫尔超晶格势的主要来源^[50]. 而莫尔超晶格势导致的局域化是莫尔激子^[16-21] 以及电子强关联多体态^[22-33] 出现的重要原因. 电子的层间再分配导致的垂直平面电偶极矩已被多个实验在双层 hBN 和 TMDs 系统中观测到^[34-42], 且测得的电子数密度随 \mathbf{r}_0 的变化方式以及数量级 (~ 0.01 nm⁻²) 与这里采用的简单模型估算结果相符.

上述对电子层间再分配的讨论是基于单层布洛赫函数, 但从直观的角度, 它更易于理解的方式是电子在不同层的 B 和 N 原子轨道之间的转移^[51]. 由于 B 和 N 原子具有不同的电子亲和势, 当位于不同层的两者相互靠近时, N 原子上的电子会向 B 原子靠近以降低总能量, 这会导致少量电子在两层中的再分配. 层间距固定的情况下, 不同层的 N 向 B 原子转移的电子数随两者的面内距离指数衰减. 如图 3(d) 所示, 在 $\mathbf{r}_0 = (\mathbf{a}_1 + \mathbf{a}_2)/3$ ($\mathbf{r}_0 = 2(\mathbf{a}_1 + \mathbf{a}_2)/3$) 时, 上层的 B(N) 原子与下层的 N(B) 原子在面内的位置重叠, 因此转移的电子数达到最大, 这导致了一个垂直向下(上)的电偶极矩; 而在 $\mathbf{r}_0 = 0$ 时, 上层的 B(N) 原子与下层的 B(N) 原子在面内重叠, 上下层互为镜像对称, 层间的净电荷转移为 0.

5 总结与讨论

本文以单层二维半导体材料中的布洛赫态为出发点, 给出了位于不同层中的布洛赫态层间耦合的具体形式, 并着重分析其在带边 $\pm\mathbf{K}$ 附近与晶格动量的关系, 以及局域布洛赫波包的层间耦合与其中心位置的关系. 在双层莫尔超晶格中, 布洛赫波包的性质随波包中心 \mathbf{R}_c 处的层间平移 $\mathbf{r}_0(\mathbf{R}_c)$ 剧烈变化, 这使得不同位置处波包的层间耦合差异极大. 同时, 布洛赫态层间耦合随晶格动量的变化使得激发态 p^\pm 型波包具有与基态 s 型完全不同的层间耦合形式, 利用该性质可以用外场来选择性地打开或关闭特定谷的 s 型波包层间耦合, 从而实现对谷的层间运输的调控. 最后一节分析了层间耦合导致的电子在不同层的再分配, 并用一个简单的紧束

缚模型计算了产生的电偶极矩密度, 给出的数量级与实验相符. 这说明本文的结果可以用来分析层间耦合带来的实验现象, 并用在基于双层材料新奇物理性质的器件上.

前面的分析将双层系统中的单层材料视为刚性, 在该假设下 $r_0(\mathbf{R}_c)$ 为 \mathbf{R}_c 的线性函数. 但实际上在莫尔超晶格的周期很大时, 每个单层中的原子排布都会发生细微的重构, 导致 $r_0(\mathbf{R}_c)$ 不再是 \mathbf{R}_c 的线性函数. 但是本文关于波包的大部分结果仍成立, 即波包的性质由其中心所在区域的 $r_0(\mathbf{R}_c)$ 决定, 只是它随 \mathbf{R}_c 的函数关系会发生改变; 同时在 \mathbf{A} , \mathbf{B} 和 \mathbf{C} 区域, 由对称性分析得到的结论 (表 2 和图 2(c)) 也成立, 只是层间耦合的定量大小会受到原子排布重构的影响. 期望将来有更精确的分析原子排布重构影响下的层间耦合的结果.

参考文献

- [1] Wang Q H, Kalantar-Zadeh K, Kis A, Coleman J N, Strano M S 2012 *Nat. Nanotech.* **7** 699
- [2] Mak K F, Shan J 2016 *Nat. Photon.* **10** 216
- [3] Jariwala D, Sangwan V K, Lauhon L J, Marks T J, Hersam M C 2014 *ACS Nano* **8** 1102
- [4] Schaibley J R, Yu H, Clark G, Rivera P, Ross J S, Seyler K L, Yao W, Xu X 2016 *Nat. Rev. Mater.* **1** 16055
- [5] Xiao D, Liu G-B, Feng W, Xu X, Yao W 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 196802
- [6] Geim A K, Grigorieva I V 2013 *Nature* **499** 419
- [7] Mak K F, Shan J 2022 *Nat. Nanotech.* **17** 686
- [8] Huang D, Choi J, Shih C-K, Li X 2022 *Nat. Nanotech.* **17** 227
- [9] Wang Y, Wang Z, Yao W, Liu G-B, Yu H 2017 *Phys. Rev. B* **95** 115429
- [10] Zhang C, Chuu C-P, Ren X, Li M-Y, Li L-J, Jin C, Chou M-Y, Shih C-K 2017 *Sci. Adv.* **3** e1601459
- [11] Yu H, Liu G-B, Tang J, Xu X, Yao W 2017 *Sci. Adv.* **3** e1701696
- [12] Yu H, Liu G-B, Yao W 2018 *2D Mater.* **5** 035021
- [13] Wu F, Lovorn T, MacDonald A H 2018 *Phys. Rev. B* **97** 035306
- [14] Wu F, Lovorn T, Tutuc E, Martin I, MacDonald A H 2019 *Phys. Rev. Lett.* **122** 086402
- [15] Yu H, Chen M, Yao W 2020 *Natl. Sci. Rev.* **7** 12
- [16] Seyler K L, Rivera P, Yu H, Wilson N P, Ray E L, Mandrus D G, Yan J, Yao W, Xu X 2019 *Nature* **567** 66
- [17] Tran K, Moody G, Wu F, et al. 2019 *Nature* **567** 71
- [18] Jin C, Regan E C, Yan A, Utama M I B, Wang D, Zhao S, Qin Y, Yang S, Zheng Z, Shi S, Watanabe K, Taniguchi T, Tongay S, Zettl A, Wang F 2019 *Nature* **567** 76
- [19] Baek H, Brotons-Gisbert M, Koong Z X, Campbell A, Rambach M, Watanabe K, Taniguchi T, Gerardot B D 2020 *Sci. Adv.* **6** eaba8526
- [20] Zhang L, Zhang Z, Wu F, Wang D, Gogna R, Hou S, Watanabe K, Taniguchi T, Kulkarni K, Kuo T, Forrest S R, Deng H 2020 *Nat. Commun.* **11** 5888
- [21] Brotons-Gisbert M, Baek H, Campbell A, Watanabe K, Taniguchi T, Gerardot B D 2021 *Phys. Rev. X* **11** 031033
- [22] Tang Y, Li L, Li T, Xu Y, Liu S, Barmak K, Watanabe K, Taniguchi T, MacDonald A H, Shan J, Mak K F 2020 *Nature* **579** 353
- [23] Regan E C, Wang D, Jin C, Utama M I B, Gao B, Wei X, Zhao S, Zhao W, Zhang Z, Yumigeta K, Blei M, Carlström J D, Watanabe K, Taniguchi T, Tongay S, Crommie M, Zettl A, Wang F 2020 *Nature* **579** 359
- [24] Shimazaki Y, Schwartz I, Watanabe K, Taniguchi T, Kroner M, Imamoğlu A 2020 *Nature* **580** 472
- [25] Wang L, Shih E M, Ghiotto A, et al. 2020 *Nat. Mater.* **19** 861
- [26] Chu Z, Regan E C, Ma X, Wang D, Xu Z, Utama M I B, Yumigeta K, Blei M, Watanabe K, Taniguchi T, Tongay S, Wang F, Lai K 2020 *Phys. Rev. Lett.* **125** 186803
- [27] Xu Y, Liu S, Rhodes D A, Watanabe K, Taniguchi T, Hone J, Elser V, Mak K F, Shan J 2020 *Nature* **587** 214
- [28] Huang X, Wang T, Miao S, Wang C, Li Z, Lian Z, Taniguchi T, Watanabe K, Okamoto S, Xiao D, Shi S-F, Cui Y-T 2021 *Nat. Phys.* **17** 715
- [29] Liu E, Taniguchi T, Watanabe K, Gabor N M, Cui Y-T, Lui C H 2021 *Phys. Rev. Lett.* **127** 037402
- [30] Li H, Li S, Regan E C, Wang D, Zhao W, Kahn S, Yumigeta K, Blei M, Taniguchi T, Watanabe K, Tongay S, Zettl A, Crommie M F, Wang F 2021 *Nature* **597** 650
- [31] Li H, Li S, Naik M H, Xie J, et al. 2021 *Nat. Phys.* **17** 1114
- [32] Shimazaki Y, Kuhlenskamp C, Schwartz I, Smoleński T, Watanabe K, Taniguchi T, Kroner M, Schmidt R, Knap M, Imamoğlu A 2021 *Phys. Rev. X* **11** 021027
- [33] Jin C, Tao Z, Li T, Xu Y, Tang Y, Zhu J, Liu S, Watanabe K, Taniguchi T, Hone J C, Fu L, Shan J, Mak K F 2021 *Nat. Mater.* **20** 940
- [34] Rogée L, Wang L, Zhang Y, Cai S, Wang P, Chhowalla M, Ji W, Lau S P 2022 *Science* **376** 973
- [35] Yasuda K, Wang X, Watanabe K, Taniguchi T, Jarillo-Herrero P 2021 *Science* **372** 1458
- [36] Woods C R, Ares P, Nevison-Andrews H, Holwill M J, Fabregas R, Guinea F, Geim A K, Novoselov K S, Walet N R, Fumagalli L 2021 *Nat. Commun.* **12** 347
- [37] Niu R, Li Z, Han X, et al. 2022 *Nat. Commun.* **13** 6241
- [38] Stern M V, Waschitz Y, Cao W, Nevo I, Watanabe K, Taniguchi T, Sela E, Urbakh M, Hod O, Shalom M B 2021 *Science* **372** 1462
- [39] Weston A, Castanon E G, Enaldiev V, et al. 2022 *Nat. Nanotech.* **17** 390
- [40] Wang X, Yasuda K, Zhang Y, Liu S, Watanabe K, Taniguchi T, Hone J, Fu L, Jarillo-Herrero P 2022 *Nat. Nanotech.* **17** 367
- [41] Liang J, Yang D, Wu J, Dadap J I, Watanabe K, Taniguchi T, Ye Z 2022 *Phys. Rev. X* **12** 041005
- [42] Zheng Z, Ma Q, Bi Z, et al. 2020 *Nature* **588** 71
- [43] Liu G-B, Xiao D, Yao Y, Xu X, Yao W 2015 *Chem. Soc. Rev.* **44** 2643
- [44] Santos J M B L d, Peres N M R, Neto A H C 2007 *Phys. Rev. Lett.* **99** 256802
- [45] Bistritzer R, MacDonald A H 2011 *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **108** 12233
- [46] Shallcross S, Sharma S, Kandelaki E, Pankratov O A 2010 *Phys. Rev. B* **81** 165105
- [47] Yu H, Yao W 2021 *Phys. Rev. X* **11** 021042
- [48] Zhang Y, Ugeda M M, Jin C, et al. 2016 *Nano Lett.* **16** 2485
- [49] Ribeiro R M, Peres N M R 2011 *Phys. Rev. B* **83** 235312
- [50] Tong Q, Chen M, Xiao F, Yu H, Yao W 2020 *2D Mater.* **8** 025007
- [51] Li L, Wu M 2017 *ACS Nano* **11** 6382

SPECIAL TOPIC—Two dimensional twisted moiré superlattice

Position- and momentum-dependent interlayer couplings in two-dimensional semiconductor moiré superlattices*Guo Rui-Ping¹⁾ Yu Hong-Yi^{1)2)†}

1) (*Guangdong Provincial Key Laboratory of Quantum Metrology and Sensing, School of Physics and Astronomy, Sun Yat-Sen University (Zhuhai Campus), Zhuhai 519082, China*)

2) (*State Key Laboratory of Optoelectronic Materials and Technologies, Sun Yat-Sen University (Guangzhou Campus), Guangzhou 510275, China*)

(Received 26 October 2022; revised manuscript received 29 November 2022)

Abstract

In recent years, various novel phenomena have been observed in two-dimensional semiconductor moiré systems, including the moiré excitons, strongly-correlated electronic states and vertical ferroelectricity. To gain an insight into the underlying physical mechanisms of these intriguing phenomena, it is essential to understand the interlayer coupling form of the electrons in moiré systems. In this work, the position- and momentum-dependent interlayer coupling effects in two-dimensional semiconductor moiré superlattices are investigated. Starting from the monolayer Bloch basis, the interlayer coupling between two Bloch states are treated as a perturbation, and the coupling matrix elements in commensurate and incommensurate bilayer structures are obtained, which are found to depend on the momentum and the interlayer translation between the two layers. Under the effect of an external potential, the Bloch states form localized wavepackets, and their interlayer couplings are found to depend on the wavepacket width as well as the interlayer translation at the wavepacket center position. Meanwhile the momentum-dependence results in very different interlayer coupling forms for the ground-state S-type and the excited-state p^\pm -type wavepackets. It is shown that at a position where the interlayer coupling between two S-type wavepackets vanishes, the coupling between an S-type wavepacket and a p^+ -type wavepacket (or between an S-type wavepacket and a p^- -type wavepacket) reaches a maximum strength. This can be used to manipulate the valley-selective interlayer transport of the ground-state wavepackets through external electric and optical fields. Besides, the vertical ferroelectricity recently discovered in bilayer systems can be attributed to the charge redistribution induced by the coupling between conduction and valence bands in different layers. Using the obtained interlayer coupling form combined with a simplified tight-binding model for the monolayer, the vertical electric dipole density can be calculated whose form and order of magnitude accord with the experimental observations.

Keywords: two-dimensional semiconductor, transition metal dichalcogenides, moiré superlattice, interlayer coupling

PACS: 73.43.Cd, 73.21.Cd, 73.22.-f, 73.21.Ac

DOI: [10.7498/aps.72.20222046](https://doi.org/10.7498/aps.72.20222046)

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 12274477).

† Corresponding author. E-mail: yuhy33@mail.sysu.edu.cn



二维半导体莫尔超晶格中随位置与动量变化的层间耦合

郭瑞平 俞弘毅

Position- and momentum-dependent interlayer couplings in two-dimensional semiconductor moiré superlattices

Guo Rui-Ping Yu Hong-Yi

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 72, 027302 (2023) DOI: 10.7498/aps.72.20222046

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.72.20222046>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

二维范德瓦耳斯半导体莫尔超晶格实验研究进展

Recent experimental research progress of two-dimensional van der Waals semiconductor moiré superlattices

物理学报. 2022, 71(12): 127309 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220347>

二维半导体材料中激子对介电屏蔽效应的探测及其应用

Detection of dielectric screening effect by excitons in two-dimensional semiconductors and its application

物理学报. 2022, 71(12): 127102 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220054>

基于过渡金属硫族化合物同质结的光电探测器

Photodetectors based on homojunctions of transition metal dichalcogenides

物理学报. 2021, 70(17): 177301 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210859>

过渡金属硫族化合物柔性基底体系的模型与应用

Model and applications of transition metal dichalcogenides based compliant substrate epitaxy system

物理学报. 2018, 67(21): 218102 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20181571>

石墨烯莫尔超晶格的晶格弛豫与衬底效应

Lattice relaxation and substrate effects of graphene moiré superlattice

物理学报. 2022, 71(18): 187302 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220872>

石墨烯莫尔超晶格体系的拓扑性质及光学研究进展

Topological properties of graphene moiré superlattice systems and recent optical studies

物理学报. 2019, 68(22): 220303 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20191317>

专题: 二维转角莫尔超晶格

二维转角莫尔超晶格专题编者按

DOI: [10.7498/aps.72.060101](https://doi.org/10.7498/aps.72.060101)

超晶格是一种具有较大周期的、人造的超结构, 类似于普通的晶格结构, 它也是一种周期性的势垒, 会形成迷你能带, 实现对材料物性的调制. 早在 20 世纪 70 年代, 人们就提出了以两种或多种晶格匹配的材料交替生长形成超晶格的概念, 即以三维材料为母体形成一维超晶格. 20 世纪 90 年代, 人们可以采用微纳加工的手段在传统 III-V 族半导体异质结二维电子气中构造百纳米级别的人造二维超晶格结构. 进入 21 世纪后, 随着石墨烯、六方氮化硼和其他二维材料的发现和兴起, 这种原子级厚度的二维材料及其丰富的材料堆垛方式为二维超晶格的发展提供了绝佳机会. 其中, 最典型的两个代表是 2013 年兴起的石墨烯/六方氮化硼异质莫尔超晶格和 2018 年发现的魔角石墨烯. 前者是二维超晶格对单粒子能带改造的典范, 而后者更是因其平的能带结构及其关联绝缘体和超导的发现而备受关注, 成为凝聚态物理一个新兴的强关联体系.

二维转角莫尔超晶格的堆垛结构丰富可调, 不论是同质转角体系还是异质转角体系, 材料、层数、转角以及衬底都是独立可调的参数. 以多层石墨烯转角莫尔超晶格为例, 四层体系可以是转角双层-双层石墨烯 (2+2), 也可以是转角单层-单层-单层-单层石墨烯 (1+1+1+1), 甚至诸如 (1+3) 或者 (1+2+1) 等其他构型. 而且对于给定的一种堆垛结构, 超晶格的物态丰富可调, 被载流子浓度、空间电场、磁场、光和温度等多场调控. 这种丰富可调性造就了二维转角莫尔体系丰富的物理效应, 实现了关联绝缘体、超导体、陈绝缘体、量子反常霍尔效应、莫尔激子、激子绝缘体、维格纳晶体等各种奇异物态. 二维转角莫尔超晶格的发展促进了转移堆垛、电学输运测量、扫描显微和谱学技术、纳米光学等实验手段的进步, 也促进了材料及器件、超导、磁学、拓扑、光学等不同领域的学科交叉与融合.

为了使读者更加了解二维转角莫尔超晶格的最新进展, 本专题特别邀请了部分活跃在转角领域的青年学者撰文, 内容涵盖二维转角莫尔超晶格的制备和纳米光学表征、转角多层石墨烯莫尔超晶格的新奇物态、二维半导体双层莫尔超晶格的层间耦合, 以及该体系中的莫尔激子和激子绝缘体等理论和实验进展. 鉴于转角领域的快速发展, 本专题很难对转角莫尔体系进行全方位的介绍, 疏漏和不足之处恳请各位同仁批评指正.

(客座编辑: 杨威 中国科学院物理研究所)

SPECIAL TOPIC—Two dimensional twisted moiré superlattice

Preface to the special topic: Two dimensional twisted moiré superlattice

DOI: [10.7498/aps.72.060101](https://doi.org/10.7498/aps.72.060101)

二维转角莫尔超晶格专题编者按

Preface to the special topic: Two dimensional twisted moiré superlattice

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 72, 060101 (2023) DOI: 10.7498/aps.72.060101

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.72.060101>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

二维磁性材料专题编者按

Preface to the special topic: Two-dimensional magnetic materials

物理学报. 2021, 70(12): 120101 <https://doi.org/10.7498/aps.70.120101>

二维范德瓦耳斯半导体莫尔超晶格实验研究进展

Recent experimental research progress of two-dimensional van der Waals semiconductor moiré superlattices

物理学报. 2022, 71(12): 127309 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220347>

光学超构材料专题编者按

Preface to the special topic: Optical metamaterials

物理学报. 2020, 69(15): 150101 <https://doi.org/10.7498/aps.69.150101>

柔性电子专题编者按

Preface to the special topic: Flexible electronics

物理学报. 2020, 69(17): 170101 <https://doi.org/10.7498/aps.69.170101>

石墨烯莫尔超晶格的晶格弛豫与衬底效应

Lattice relaxation and substrate effects of graphene moiré superlattice

物理学报. 2022, 71(18): 187302 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220872>

从“魔角”石墨烯到摩尔超晶格量子模拟器

From magic angle twisted bilayer graphene to moiré superlattice quantum simulator

物理学报. 2021, 70(11): 118101 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210476>

专题: 二维转角莫尔超晶格

莫尔晶格中的激子绝缘体

古杰^{1)†} 马立国^{2)‡}

1) (复旦大学物理系, 应用表面物理国家重点实验室, 上海 200433)

2) (康奈尔大学应用物理系, 伊萨卡 14850)

(2023 年 1 月 16 日收到; 2023 年 2 月 9 日收到修改稿)

当载流子动能被抑制后, 双层量子阱中的电子-空穴可以通过层间库仑相互作用形成激子绝缘体, 而抑制动能的主要手段为施加外部磁场产生朗道能级. 在二维莫尔晶格中通过能带折叠可以显著抑制载流子动能进而形成莫尔平带. 本文主要介绍通过莫尔平带实现无外加磁场的激子绝缘体, 着重介绍几个不同的实验思路, 并展示如何利用差分反射谱、层间激子光致发光谱、2s 激子探测谱、量子电容以及微波阻抗谱探测激子绝缘体信号. 总的来说, 莫尔晶格中形成的激子绝缘体为在固体环境中研究 Bose-Hubbard 模型提供了很好的平台, 其研究内容可包括激子莫特绝缘体、激子超流以及它们之间的连续转变等.

关键词: 激子绝缘体, 莫尔晶格, 平带, 二维半导体**PACS:** 71.35.Lk, 71.27.+a, 71.35.-y, 73.21.Cd**DOI:** 10.7498/aps.72.20230079

1 引言

激子绝缘体的理论发展于 20 世纪 60 年代早期^[1-5], 当时凝聚态体系刚刚诞生了超导的 BCS 理论, 它描述的是电子-电子配对 (库珀对) 问题, 该理论非常成功地解释了常规超导体的诸多性质, 比如超导带隙随转变温度的关系、迈斯纳效应等. 同期研究者们通过对半导体的发光研究, 已经认识到直接带隙半导体中价带的空穴与导带的电子会束缚在一起形成激子并辐射复合发光, 其发出的光子能量小于半导体的能带带隙, 二者之差便是激子的束缚能. 伴随着 BCS 理论的成功, 与之相关的一个疑问便是: 如果电子与电子可以配对形成库珀对超流, 那么电子-空穴是否也能配对形成电子-空穴对 (激子) 超流? 因为超导的转变温度与库珀对的束缚能相关, 在常规超导体中, 该束缚能在 1 meV 量级, 而半导体中激子的束缚能往往在 10—100 meV

的量级, 那么激子超流其转变温度理论上可以发生在室温! 然而前面所提到的半导体中的激子由于辐射复合或其他衰减渠道 (如俄歇效应) 的存在, 其寿命往往低于 1 ns, 因此很难形成足够高的密度来研究激子凝聚, 那么是否有体系能够存在无衰减的激子呢? 通过理论发现^[1,3,4], 在一些小带隙的半导体中, 如果激子的束缚能够超过其带隙, 那么该体系的单粒子能带会由于存在电子-空穴的相互吸引而表现得不稳定 (图 1(a)), 最终自发出现电子-空穴对并打开一个关联能隙; 这种关联能隙也有可能存在于某些半金属的材料中 (图 1(a)), 研究者们把这一类自发出现电子-空穴对的材料统称为激子绝缘体. 在低温下, 激子绝缘体可发生相变形成玻色爱因斯坦型 (BEC 型) 的激子凝聚或者 BCS 型的激子凝聚, 前者主要发生在激子浓度较低的区域 (激子束缚能较强), 而后者发生在激子浓度较高的区域 (激子束缚能较弱). 激子绝缘体的候选者有诸如 Ta_2NiSe_5 , $1T\text{-TaSe}_2$, WTe_2 , InAs/GaSb 等,

† 通信作者. E-mail: gujielog@fudan.edu.cn

‡ 通信作者. E-mail: liguo.ma@cornell.edu

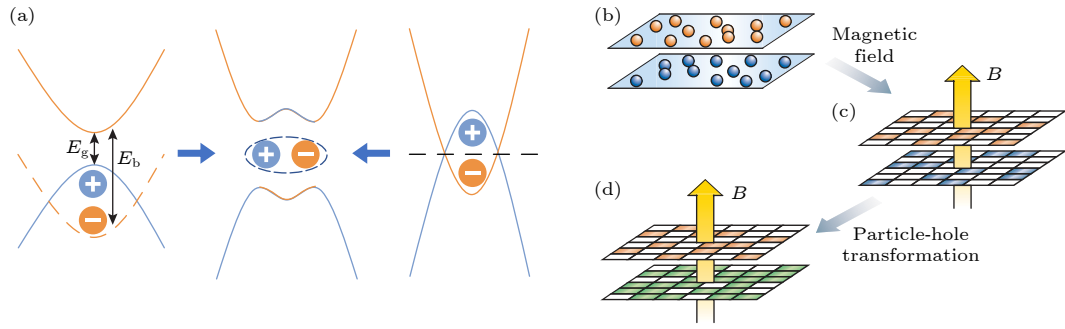


图 1 激子绝缘体产生示意图 (a) 左, 半导体带隙 E_g , 激子束缚能 E_b , 当 E_b 大于 E_g 时, 单粒子能带结构在电子-空穴吸引作用下表现得不稳定; 右, 半金属有着负的带隙, 黑色虚线表示费米能, 同样在电子-空穴的吸引下能带结构不稳定, 二者都可能自发形成激子并打开一个关联能隙; (b)–(d) 一个电子-电子的双层结构在纵向磁场中等价于一个电子-空穴双层结构^[18]; (b) 电子处于平行的上下两层中的示意图; (c) 在磁场中电子的动能量子化到一系列分立的朗道能级, 每个朗道能级包含若干简并的电子圆形轨道, 这里用方格子代表轨道; 当磁场足够强时, 所有电子都集中在最低朗道能级并且是部分填充 (图中为 1/3 填充); (d) 在下面一层中进行粒子-空穴转换, 此时原先空的格点等价为空穴占据 (图中绿色格点), 原先两层的电子-电子库仑排斥在此变换后等价于两层的电子-空穴库仑吸引, 当两层电子空穴数目一致的时候 (各自都半填充最低朗道能级), 最有可能发生激子的玻色爱因斯坦凝聚 (图中展示的是电子-空穴不相等的情况)

Fig. 1. Schematic for exciton insulator formation: (a) Left, a semiconductor with bandgap E_g and exciton binding energy E_b , when E_b is larger than E_g , the single particle band structure is not stable under electron-hole attraction; right, a semimetal with a negative bandgap, black dashed line indicates the Fermi level. Similarly, under electron-hole attraction, the band structure is not stable. Both will spontaneously form exciton and open a correlation gap. (b)–(d) An electron-electron bilayer system in a strong magnetic field is equivalent to an electron-hole bilayer^[18]. (b) Cartoon depiction of two parallel layers of electrons. (c) In a magnetic field the kinetic energy of 2D electrons is quantized into discrete Landau energy levels. Each such Landau level contains a huge number of degenerate orbitals, here depicted schematically as a checkerboard of sites. If the field is strong enough, all electrons reside in the lowest Landau level, and only occupy a fraction (here one-third) of the available sites. (d) A particle-hole transformation applied to the lower electron layer places the emphasis on the unoccupied sites—that is, the holes (colored green) in that layer. This transformation changes the sign of the Coulomb interactions between layers from repulsive to attractive. Exciton BEC is most likely to occur when the number of electrons and holes are equal, that is, when each layer is half-filled (this is not the case in this figure).

研究者们通过光电能谱^[6]、等离子激元软化^[7,8]、量子输运^[9,10]、增大压强^[11]及红外光谱^[12]等进行了丰富的研究, 但这些材料关于激子凝聚的实验支撑还未出现^[13,14]. 在探索无衰减的激子过程中, 研究者们发现了另外一个途径, 如果能够将电子和空穴空间上分置到相邻的双层量子阱结构中, 中间通过介电材料隔开防止电子-空穴复合, 当中间层厚度足够薄以至于电子-空穴的相互吸引能量远远超过电子-空穴各自在层中的动能时, 这样一个由电子-空穴吸引相互作用占主导的体系便有可能自发形成激子. 研究者们最开始在双层砷化镓量子阱中实现了这样的电子-空穴双层结构^[15–17], 然而为了抑制其电子-空穴的动能需要施加纵向的磁场, 当双层砷化镓都处于最低朗道能级的半填充时, 体系自发形成电子-空穴对 (其中一层需要进行粒子-空穴转换 (图 1(b)^[18])). 并且该体系能够通过一系列电输运的测量方法观察到激子超流的现象, 比如完美的库仑拖拽 (perfect Coulomb drag)、量子化的拖拽霍尔电阻、零耗散的回流电流 (counter-flow current)、约瑟夫森型的隧穿电流等^[16–19]. 相比于

1T-TaSe₂, WTe₂等材料体系, 电子-空穴双层体系具有更丰富的实验现象, 因此成为研究激子绝缘体的重要分支. 近年来二维材料体系的发展对该领域的研究也有显著的促进作用^[20,21]. 比如在石墨烯-氮化硼-石墨烯结构中, 当氮化硼厚度约为 3 nm 时, 两层石墨烯中的电子-空穴可以通过相互吸引形成激子^[22,23], 并且该体系通过栅极电压可以很容易调控各自的载流子浓度, 研究者们甚至可以观察到 BEC 到 BCS 的转变^[24]. 然而这类双层体系都需要外加磁场产生朗道平带来抑制载流子的动能, 那么是否有办法无需外加磁场也可以产生平带呢? 这就是本文主要讨论的问题, 本文将展示利用莫尔平带在双层体系中实现无磁场情况下的激子绝缘体.

2 莫尔平带

近年来在实验室中快速发展的二维材料转移工艺使得研究者们能够制备出高质量的堆叠结构, 比如把两层石墨烯或过渡金属硫族化合物 (TMD) 相对转动一定角度, 或者将有一定晶格不匹配的

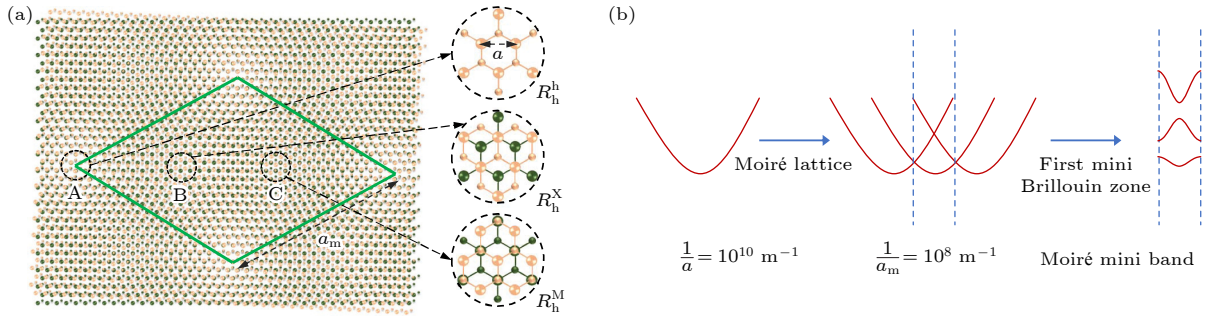


图2 莫尔平带 (a) 在TMD异质结中形成的莫尔晶格^[25], 其中A, B, C三个位置是莫尔格点中的高对称点, a_m 为莫尔周期, 其上下层原子堆叠情况参照右边的放大示意图(此图为转角 0° 附近); (b) 在形成莫尔晶格后, 布里渊区从原来的 $1/a$ (10^{10} m^{-1}) (a 为原子间距) 折叠为 $1/a_m$ (10^8 m^{-1}), 形成迷你布里渊区, 在其边界通过布拉格反射打开能隙, 形成莫尔平带

Fig. 2. Moiré flat band: (a) Moiré lattice formed in TMD heterobilayer. A, B, C are three high symmetry points in the moiré unit cell^[25], here a_m is the moiré lattice period. And the zoomed in lattice configuration was shown on the right (this is a zero-angle twist case). (b) After having moiré lattice, the Brillouin zone shrinks from the original $1/a$ ($\sim 10^{10} \text{ m}^{-1}$) (a is the original distance between neighboring atoms) to $1/a_m$ ($\sim 10^8 \text{ m}^{-1}$), forming mini Brillouin zone. This opens a gap at its boundary due to Bragg reflection followed by the emergence of moiré flat band.

两层材料堆叠在一起, 可以形成长周期的莫尔晶格(图2(a)^[25]), 其莫尔周期 a_m 的表达式为: $a_m = a/\sqrt{\theta^2 + \delta^2}$, 其中 a 为原先单层的晶格长度, θ 为两层材料相对转动角度(弧度单位), δ 为两层晶格不匹配程度(百分比). 由莫尔晶格导致的能带折叠可以显著减小单粒子的动能至 $\pi^2 \hbar^2 / (2m^* \cdot a_m^2)$ (图2(b)), 形成莫尔平带, 其中 m^* 为电子的有效质量, \hbar 为普朗克常数. 从实空间的图像来看, 通常情况下莫尔晶格中的某一个高对称点会有较强的莫尔势来限制粒子, 使得粒子的瓦尼尔轨道局域在该莫尔格点上. 由于粒子的动能 t 被抑制, 电子之间的关联便可能占主导进而出现较强的关联现象. 通常研究者们会使用莫尔晶格中的电子(本节中均使用电子, 空穴与之等价)填充数目 ν 来描述电子的浓度, 比如在 $\nu = 1$ 时, 每个莫尔格点有且仅有一个电子, 当再注入额外的电子时, 无论该电子被注入到哪个格点上, 总会感受到来自于那个格点中已存在的电子的排斥, 从而需要克服一定的能量 U 才能顺利注入, 这也就是莫尔晶格在 $\nu = 1$ 会有电子关联带隙的原因. 人们通常称 U 为格点排斥能, 而 $\nu = 1$ 的带隙为莫特带隙, 莫特带隙上(下)能支为第二(一) Hubbard能带. 实际上早在2010年, 罗格斯大学 Andrei 课题组^[26]就在转角石墨烯中通过扫描隧道谱观察到了在费米面附近的范霍夫奇点; 2011年, 奥斯汀大学 Bistritzer 和 MacDonald^[27]理论预言了当两层石墨烯相对转动一定角度过后, 在某些特定的“魔角”, 会产生莫尔平带. 2017年, MacDonald课题组和香港大学姚望课题组^[25,28]预

言在 TMD莫尔材料中也存在有效的莫尔周期势. 紧接着在2018年麻省理工大学的 Jarillo-Herrero 组^[29,30]成功观察到了转角石墨烯在 1.1° 魔角附近由莫尔平带产生的电子强关联态. 之后在石墨烯和 TMD 二维体系中, 一系列与莫尔晶格和平带相关的实验现象相继被发现^[31-151], 包括量子反常霍尔效应^[54,120]、广义 Wigner Crystal 态^[56,72,98,103,110]、连续 Mott 相变^[108,109]等.

3 莫尔晶格中的激子绝缘体

引言中提到, 研究者们已经在石墨烯-氮化硼-石墨烯这样的二维堆叠结构中研究过激子绝缘体^[22,23], 那么直观的印象便是将莫尔晶格引入这个体系, 由于莫尔平带的作用, 其形成的激子绝缘体很有可能是不需要外加磁场的. 那能否将该结构中的上下两层石墨烯分别替换成转角石墨烯的莫尔结构呢? 这看似很直接的实验构思在实现起来却颇有难度^[152], 原因是转角石墨烯的强关联现象只发生在很小的一段角度区间内(“魔角” $\pm 0.1^\circ$), 这会带来两个困扰: 一是比较难精确控制角度, 二是可能发生晶格弛豫, 使得原本精确的转角弛豫到无法预测的角度. 并且由于存在面内不均匀的张力, 这类弛豫往往会导致最终的莫尔晶格周期在空间上不均匀分布, 随之而来的问题便是上下两层莫尔结构的周期也将不匹配, 无法有效形成层间激子. 上述原因导致双莫尔石墨烯晶格的制备非常困难. 而 TMD 异质结的莫尔体系正好可以弥补这样的缺憾. 由于

TMD 异质结是通过晶格失配形成的莫尔结构, 异质结中的两层材料在微小转动角度 ($\pm 2^\circ$) 下其莫尔周期不会发生太大的变化, 从而表现出非常稳定的电子关联现象. 并且由于 TMD 材料在可见或近红外有着非常明显的光学激子响应, 使得通过光学手段来研究该体系的关联效应成为可能, 比如通过激子探测研究关联绝缘态 [72], 通过磁光效应研究莫尔晶格的 Hubbard 模型模拟以及条纹像的空间分布等 [57,103]. 下文将主要介绍通过 TMD 异质结的莫尔平带来实现激子绝缘体.

3.1 单层 TMD-薄氮化硼-TMD 莫尔结构 (简称单层-莫尔结构) [153,154]

最近几乎同时由加州伯克利大学的 Wang 课题组 [153] 和康奈尔大学的 Mak、Shan 课题组 [154] 率先发现在 WSe_2 -hBN- WSe_2/WS_2 结构中有存在激子绝缘体的证据. 该结构由单层 WSe_2 和 WSe_2/WS_2 莫尔晶格组成, 中间层 hBN 的厚度为 2—3 层, 其

中形成激子的过程与引言中提及的上下电子空穴双层结构类似 (图 1(b)), 也是主要考虑总的粒子数占据 $\nu = 1$ 的情况 (即每个莫尔格点填充一个粒子) (图 3(a)). 此时第一 Hubbard 能带为全占据, 对应于引言中的最低朗道能级全占据, 并且二维体系可以比较方便地通过纵向电场来调节单层与莫尔晶格中的粒子数占比. 当莫尔晶格中空穴占据数为 $1 - \nu'$, 而单层 WSe_2 中的空穴数刚好为 ν' (总占据数为 1) 时, 与有磁场的情况类似, 在莫尔晶格的第一 Hubbard 能带中进行粒子-空穴转换, 则正好有 ν' 的电子占据. 此时上下两层的空穴与电子数目刚好匹配, 可以完美配对束缚在一起形成激子 (图 3(a)), 此时激子的浓度 $\nu_x = \nu'$. 并且由于单层 WSe_2 和 WSe_2/WS_2 莫尔结构的价带在零电场下挨得很近 (图 3(b)), 在小电场范围内 (0.2 V/nm) 便可以实现能带交叉, 调节电场等价于调节体系的激子浓度, ν_x 理论上的可调范围值为 0—1. 在单激子极限下, 可以预估激子的束缚能约为莫尔晶格的

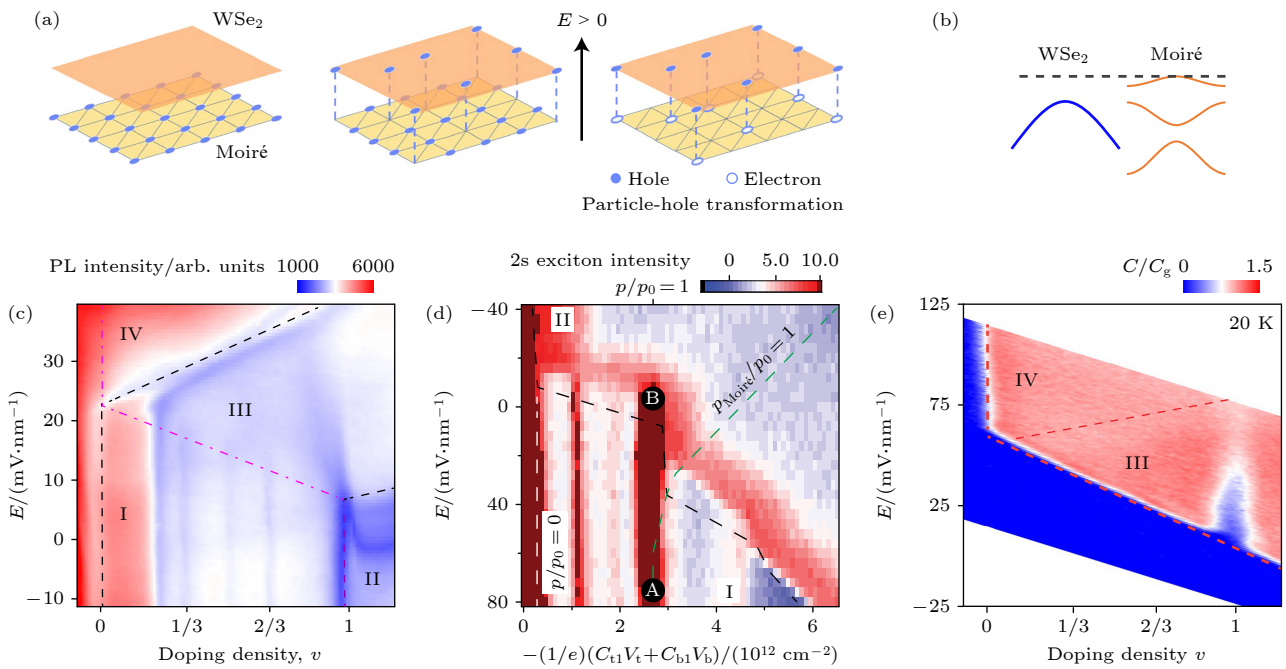


图 3 单层-莫尔结构中的激子绝缘体 [153,154] (a) 该结构中的粒子-空穴转换示意图; (b) 单层 WSe_2 与莫尔异质结在不加电场时的能带相对位置示意图, 其中黑色虚线代表费米能; (c)–(e) 莫尔异质结层间激子光致发光强度 (c), 激子探测手段中的 2s 态强度 (d), 以及穿透电容 (e) 随电场和电荷浓度的变化. 其中穿透电容可以清楚看到在区域 III (单层与莫尔晶格都同时被掺杂了的区域), 在总的浓度为 1 的时候, 连续调节电场改变体系激子浓度 (浓度范围 ν_x 为 0—0.7), 体系始终有带隙

Fig. 3. Exciton insulator in monolayer-hBN-moiré structure [153,154]: (a) Schematic for particle-hole transformation in this system; (b) band alignment between monolayer WSe_2 and moiré heterobilayer without electric field, black dashed line indicates the Fermi level; (c)–(e) photoluminescence intensity from moiré interlayer exciton (c), exciton sensor's 2s intensity (d) and penetration capacitance (e) as a function of electric field and dope. The penetration capacitance clearly shows in region III, where both monolayer and moiré are doped and when total filling is at 1, the system is always gaped when continuously tune the exciton density ($\nu_x \sim 0-0.7$) by varying the electric field.

莫特带隙, 大小约为 50 meV^[113]. 原因是在单激子情况下, 该激子存在的格点在破坏电子-空穴的束缚后, 单层 WSe₂ 中离散的空穴需要游离到该格点之外的某个位置, 但是该位置下面的莫尔格点都被空穴占据 (因为体系的总占据数 $\nu = 1$), 因此离散的空穴依然会感受到来自于下方格点中空穴的排斥能, 当氮化硼厚度 (1 nm) 远小于莫尔周期 (8 nm) 时, 此排斥能约为格点排斥能 U . Mak、Shan 课题组^[154] 通过莫尔层间激子的光致发光光谱, Wang 课题组^[153] 通过 2s 激子探测的方式发现 (图 3(c) 和图 3(d)) 在总电荷密度 $\nu = 1$ 时, 如果空穴全部在莫尔晶格中, 系统自然表现出莫特绝缘体的性质, 但是当施加电场连续的将空穴转移到单层 WSe₂ 的过程中, 系统一直有处于绝缘态的迹象, 这表明无法将单层 WSe₂ 和莫尔结构独立考虑. 因为当不考虑二者的层间库仑相互作用同时, 单层 WSe₂ 在掺杂一定浓度的空穴后, 其一定表现出导体的性质, 同样莫尔结构也如此 (除去特殊的几个浓度之外, 比如占据数为 1/3, 1/2, 2/3), 因此系统无法在连续调节 ν' (ν_x) 的时候都表现出绝缘体的特性. 除非将二者的层间库仑作用考虑进来, 形成稳定的激子束缚态, 因为激子是中性粒子, 因此系统表现出绝缘体的特点, 连续调节电场仅仅是在调节激子的浓度, 并不会影响系统的绝缘性质. Mak、Shan 课题组^[154] 还通过量子穿透电容定量测量了体系的带隙 (图 3(e)), 他们发现在低激子浓度下的带隙接近于莫尔晶格的关联带隙, 都约为 50 meV, 并随着激子浓度 ν_x 增大, 该带隙会减小直到 ν_x 约为 0.7 时, 该体系发生激子的莫特转变进入电子-空穴的等离子区间, 伴随着带隙也消失.

3.2 单层 TMD-双层 TMD 结构 (简称单层-双层结构 (图 4(a)))

单层-双层结构中莫尔晶格产生于单层与双层的界面处, 双层中的另外一层会独立出来, 因此该结构可以看成是单层-莫尔结构, 但与之前的结构不同的是, 单层-双层结构中去除了中间层的 hBN, 因此其电子-空穴的吸引能进一步提高, 如果能够抑制其层间的隧穿, 那么该结构也有可能形成激子绝缘体. 该设想最近由伦斯勒理工学院的 Shi 课题组^[155] 实现, 他们将单层 WS₂ 和双层 WSe₂ 以无转

角的方式堆叠在一起, 观察到了激子绝缘体的证据. 由于 WS₂ 的价带离 WSe₂ 非常远, 因此低能量的空穴只掺杂到双层 WSe₂ 中, 并且两层 WSe₂ 中的空穴浓度分布也可以通过电场来调控, 如图 4(a) 所示. 由于自然形成的双层 WSe₂ 中存在自旋-谷锁定及其相对 180° 转角的特性, 层间隧穿会被显著抑制^[156], 因此两层 WSe₂ 中空穴的库仑相互作用等价于前面介绍的单层-莫尔结构. Shi 课题组^[155] 发现在莫尔晶格与单层之间总的空穴浓度为 1 的时候, 连续调节上下两层 WSe₂ 的空穴浓度, 系统会有接近于绝缘态的光学响应 (图 4(b)), 此现象与前面提到的单层-莫尔结构中的一致, 是为激子绝缘体. 最后他们通过微波阻抗 (MIM) 的测量, 也证实了系统的确处于带隙之中 (图 4(c)).

3.3 单层 TMD-双层 TMD-单层 TMD 结构 (简称双莫尔结构)

在所有的结构中, 双莫尔结构应该是理论上最容易实现零场下激子绝缘体的体系. 如果把引言中提及的石墨烯-氮化硼-石墨烯结构中的石墨烯都替换成莫尔晶格, 此时上下层都具备平带的特点, 电子空穴受限在莫尔格点中, 将具备更强的相互作用. 最近由康奈尔大学的 Zeng 等^[157] 在单层 WS₂-双层 WSe₂-单层 WS₂ 中构造出了双莫尔结构, (图 4(d)), 该结构可以看作是 WS₂/WSe₂ 和 WSe₂/WS₂ 两个莫尔晶格的叠加, 如果只考虑体系掺杂电子的情况, 这些电子会聚集在上下两层 WS₂ 中 (体系的能带排列如图 4(e) 所示), 而中间的双层 WSe₂ 正好可以作为介质层阻止电子的隧穿. 通过控制电场可以控制电子在两个莫尔晶格之中的比例, 该实验组观察到的证据为在 $\nu = 1$ 的时候, 当连续改变两个莫尔晶格中的电子浓度时, 系统一直处于绝缘态 (通过额外一层 WSe₂ 2s 激子探测)(图 4(f)), 这与前面提到的单层-莫尔结构和单层-双层结构中观察到的现象一样, 不同之处是这个体系由于上下莫尔晶格对称性的原因, 体系的激子浓度 ν_x 最多为 1/2, 所以没有观察到激子的莫特等离子转变. 另外, 该课题组还发现在总的电子浓度为分数时 (2/3, 4/3 等), 体系在连续改变两层莫尔晶格浓度比例时, 体系依然处于绝缘态, 此时系统处于激子密度波相, 它打破了莫尔晶格的平移对称性, 如图 4(g) 所示.

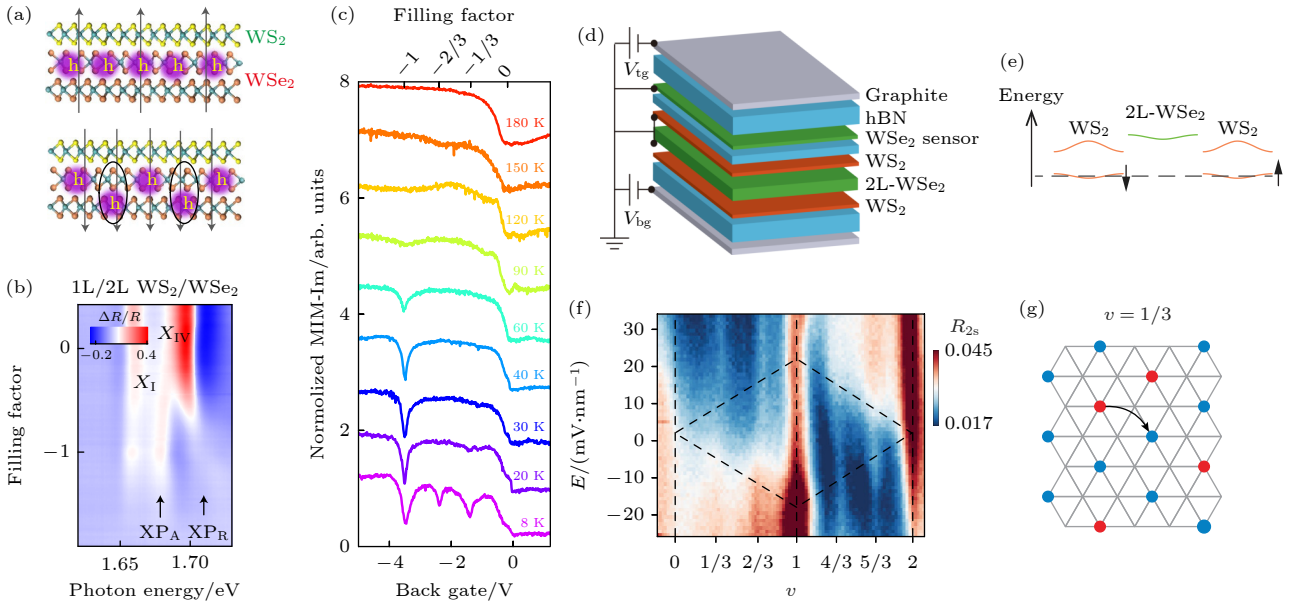


图4 单层-双层结构中 (a)–(c)^[155] 以及双莫尔结构中 (d)–(g)^[157] 的激子绝缘体 (a) 电场调控空穴在两层 WSe_2 中的分布, 电场向上时 (上图), 空穴全部分布于靠近莫尔晶格的那层 WSe_2 , 当电场向下时 (下图), 空穴可以被转移到最下层 WSe_2 中, 并且与上层中的空位 (电子) 束缚在一起形成激子; (b) 扫描背向栅极电压调控两层空穴比例, 在总的浓度为 1 的时候出现绝缘态的性质; (c) 通过 MIM 测量到体系在 $\nu = 1$ 的确处于绝缘态, 其带隙在 120 K 消失; (d) 双莫尔结构样品示意图, 最上层 WSe_2 用于 2s 激子探测; (e) WS_2 -2L WSe_2 - WS_2 导带能带排列; (f) 2s 激子反射强度随电场 E 和电子浓度 ν 的变化关系; (g) 激子密度波示意图, 在总的电子浓度 $\nu = 1/3$ 时, 红 (蓝) 色点表示上 (下) 层莫尔晶格中的电子, 激子在晶格中移动时会被限制在 $1/3$ 的格点中 (如图中箭头所示)

Fig. 4. Exciton insulator in monolayer TMD-bilayer TMD structure (a)–(c)^[155] and in double moiré structure (d)–(g)^[157]: (a) Electric field tunes hole distribution in both WSe_2 layers, when it points upward (upper picture), holes are all located in the moiré WSe_2 layer, when it points downward (lower picture), holes can be transferred to another WSe_2 layer. Those holes can bond with vacancies (electron) in the moiré to form excitons. (b) Back-gate dependent reflection spectrum. Insulator behavior emerges at total filling 1. (c) MIM showing the insulator state at $\nu = 1$ has a gap equivalent to 120 K. (d) Double moiré sample schematic, the top most WSe_2 layer is used for 2s exciton sensing. (e) Conduction band alignment in WS_2 -2L WSe_2 - WS_2 structure. (f) 2s reflection amplitude as a function of electric field E and electron density ν . (g) Exciton density wave schematic. At total electron filling $\nu = 1/3$, the red (blue) dots represent charges in top (bottom) moiré, exciton hops only under the $1/3$ lattice (as shown by the black arrow).

4 其他 TMD 体系中的激子绝缘体^[158]

前面介绍了有莫尔晶格的双层库仑相互作用体系中的激子绝缘体, 这里面莫尔晶格的主要作用是提供平带以产生较强的激子束缚, 进而实现零磁场下的激子绝缘体. 如果单从平带来看, 平带也就意味着载流子有效质量大, 实际上单层 TMD 材料其载流子有效质量约为 $0.5m_0$ ^[159] (m_0 为电子质量), 远远大于石墨烯 (狄拉克费米子有效质量约为 0) 或者传统的 GaAs 体系^[160] (有效质量约为 $0.06m_0$), 通过理论计算得知激子绝缘体的带隙与其有效质量是成正相关的^[161,162], 因此, 在有较大有效质量的单层 TMD-薄氮化硼-单层 TMD (简称单层-单层结构) 中, 当两层距离足够小的时候, 层间电子-空穴的库仑束缚能也有可能主导于其层内的载流子动能, 进而实现较强的电子-空穴关联, 产

生激子绝缘体. 该设想在不久前被康奈尔大学的 Shan 和 Mak 课题组^[158] 证实. 他们研究的体系为单层 MoSe_2 -氮化硼-单层 WSe_2 , 如图 5(a) 所示. 单层 MoSe_2 和单层 WSe_2 形成 type-II 的能带对齐, MoSe_2 (具有相对更低的导带) 中容纳的电子和 WSe_2 (具有相对更高的价带) 中容纳的空穴可以形成层间激子. 这里氮化硼厚度约为 5–6 层, 在此厚度下层间载流子隧穿可以忽略不计, 从而避免系统中的层间激子处于非平衡态^[163]. Shan 和 Mak 课题组^[158] 使用一个巧妙的设计, 实现了对该体系中电子、空穴以及电子-空穴对 (激子) 的良好电接触. 他们通过在其中一个单层上施加的偏压将电子层与空穴层的化学势分开, 同时利用栅极电压控制体系的平均化学势来调节 MoSe_2 和 WSe_2 的能带相对电极电势的位置, 进而注入电子 (MoSe_2)-空穴 (WSe_2), 如图 5(b) 和图 5(c) 所示. 在栅极电压

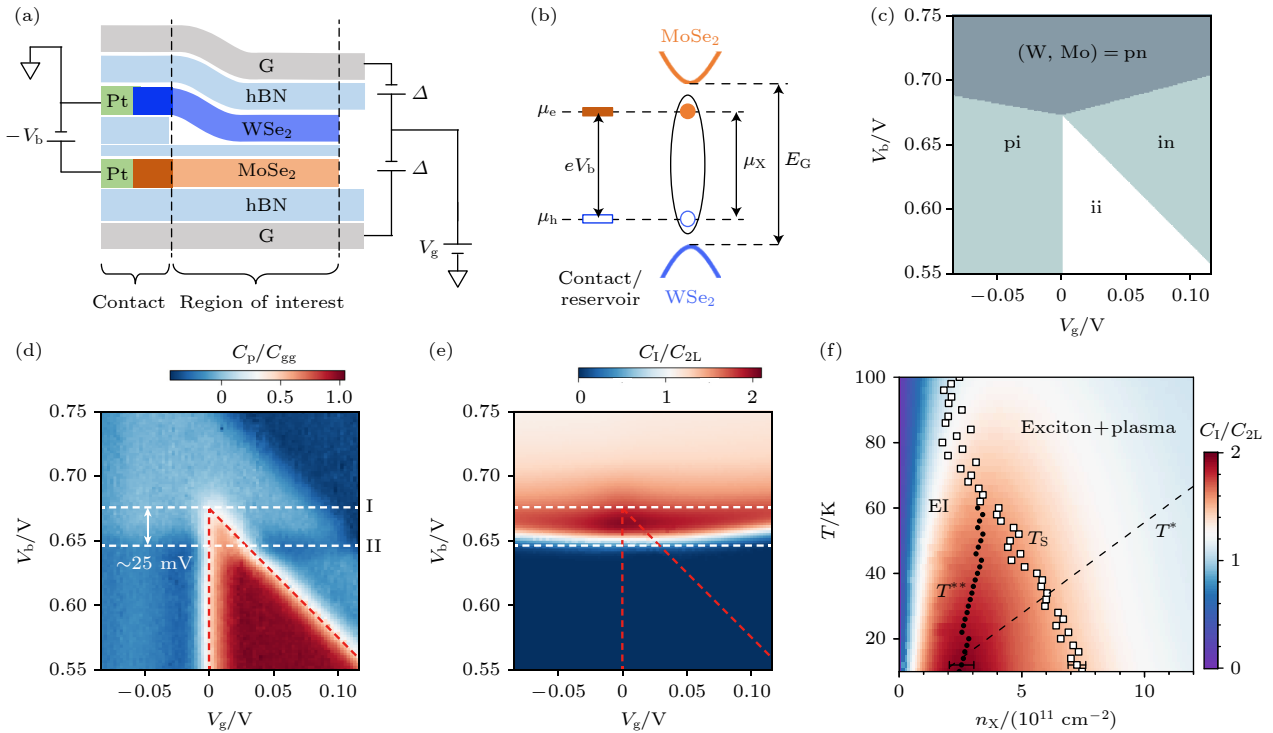


图 5 单层-单层结构中的激子绝缘体^[158] (a) 样品结构示意图, V_b 和 V_g 分别代表施加的偏压和栅压, Δ 为额外施加的面外电场 (以产生高掺杂的接触区域); (b) 能带和化学势相对位置示意图, 其中 μ_e , μ_h , μ_X 分别代表电子、空穴、激子的化学势, E_G 是系统的带隙; (c) 静电相位图 (忽略层间激子耦合), 其中 p, n, i 分别代表空穴、电子掺杂和本征状态; (d), (e) 穿透电容 (d) 和层间电容 (e) 随偏压 V_b 和栅压 V_g 的变化关系; 穿透电容 (d) 观测到的绝缘区域 (红色) 与层间电容 (e) 观测到的电子-空穴对可注入区域 (红色) 重叠的部分 (白色虚线与红色虚线围出的三角区域) 指示了激子绝缘体的存在; (f) 激子绝缘体相图

Fig. 5. Exciton insulator in monolayer-monolayer structure^[158]: (a) Sample schematic in which V_b and V_g represent bias voltage and gate voltage, respectively; (b) band diagram of the device in which μ_e , μ_h and μ_X represent chemical potential of electron, hole and exciton, respectively; E_G is the band gap; (c) electrostatic phase diagram in which p, n, i represent hole, electron doped and intrinsic layers, respectively; (d), (e) penetration capacitance (d) and interlayer capacitance (e) as a function of bias V_b and gate V_g ; the charge insulating region indicated by penetration capacitance (red in (d)) and electron-hole pair injectable region measured by interlayer capacitance (red in (e)) has an overlap, which is the triangle region surrounded by red and white dashes; that indicates the existing of excitonic insulator; (f) thermal-dynamic phase diagram of interlayer excitons in the system.

和偏压的控制下, 可使得系统中的电子和空穴数目相等. 通过穿透电容 (图 5(d)) 和层间电容 (图 5(e)) 的测量, 该课题组发现在某个特定偏压区域 (图 5(d) 和 5(e) 两条白色虚线之间), 当穿透电容表现出绝缘性质的时候, 层间电容依然有极强的信号, 这表明体系出现了激子, 穿透电容的绝缘信号表明激子不导电, 而层间电容的信号表明激子是可以被注入的 (具有压缩性). 这提供了系统处于激子绝缘态的直接热力学证据.

5 展望

在前面介绍的几个 TMD 体系中, 研究者们仅仅观察到了激子绝缘体存在电荷带隙的证据, 证明了激子的存在, 但是体系是否处于激子超流这样的宏观相干态仍然是个还未回答的问题. 为了要观察

此类现象, 需要借助在引言中提到的激子运输的实验方法来验证 (如图 6 所示). 对比前面不同的产生激子绝缘体的结构, 其中单层-双层的结构在样品制备环节最为容易, 然而由于单层-双层直接接触, 很难开发基于此类结构的电运输测量; 双莫尔结构理论上最容易实现激子宏观相干态, 但是由于其样品制备过程中的不确定因素 (转角不均匀、晶格错位), 目前还比较难对其进行进一步的实验开发; 单层-单层的结构由于没有莫尔势的帮助, 其实现激子绝缘体的温度要低于其他结构. 相比之下, 单层-莫尔结构不仅具备比较高的激子绝缘体转变温度, 并且在制备库仑拖拽电极上也具有可行性, 因此开发此类结构的电运输测量是未来探索莫尔体系中激子相干态的重要方向. 当然, 从样品制备的角度来看, 如果能够开发出比较干净的 TMD 异质结生长的办法, 那么产生比较理想的双莫尔结构将不

再是梦想. 另外莫尔体系的激子还有更多有趣的物理现象等待人们去探索, 其中之一为通过激子研究 Bose-Hubbard 模型^[164,165]. 由于激子受限在莫尔格点中, 如果考虑激子与激子之间的相互作用, 通过将激子类比于电子, 人们自然可以联想到是否可以观察到激子的莫特绝缘体, 广义的激子维格纳态(激子固体), 以及激子从超流到莫特绝缘体转变的过程等. 最近有工作初步涉及到了这方面的研究^[166,167], 期待未来有更多精彩的实验现象待研究者们去发掘.

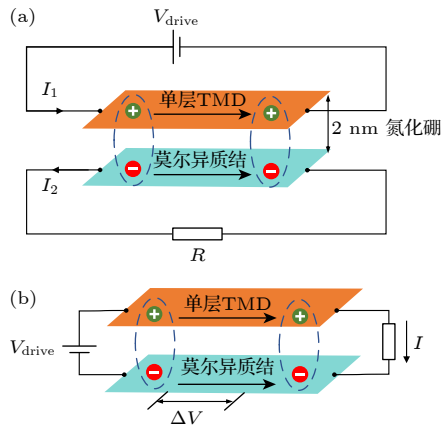


图6 激子电输运实验示意图 (a) 库仑拖拽实验: 单层TMD与莫尔异质结晶格之间有2 nm的氮化硼中间层, 单层TMD和莫尔异质结分别处于不同回路, 在单层TMD中施加电流 I_1 , 测量在莫尔异质结中的拖拽电流 I_2 , 这里莫尔异质结回路没有外加电流源, 激子形成宏观相干态后, $I_1 = I_2$, 并且回流实验 (b) 观测到没有耗散的层内电流 ($\Delta V = 0$)

Fig. 6. Exciton transport experiment: (a) Coulomb drag measurement. Monolayer TMD and moiré structure are separated by a 2 nm hBN and they are in different circuits. A driving current I_1 is in the monolayer TMD circuit and the drag current in moiré circuit can be measured, here moiré circuit is not connected with any external source. When exciton superfluidity forms, $I_1 = I_2$ and longitudinal voltage drop of counter-flow configuration shown in (b) should be $\Delta V = 0$.

参考文献

[1] Mott N F 1961 *Philos. Mag. J. Theor. Exp. Appl. Phys.* **6** 287
 [2] Blatt J M, Böer K W, Brandt W 1962 *Phys. Rev.* **126** 1691
 [3] Knox R S 1963 *Theory of excitons* (New York: Academic Press) p100
 [4] Jérôme D, Rice T M, Kohn W 1967 *Phys. Rev.* **158** 462
 [5] Lou W K, Chang K 2022 *Physics* **51** 303 (in Chinese) [娄文凯, 常凯 2022 物理 **51** 303]
 [6] Wakisaka Y, Sudayama T, Takubo K, Mizokawa T, Arita M, Namatame H, Taniguchi M, Katayama N, Nohara M, Takagi H 2009 *Phys. Rev. Lett.* **103** 026402

[7] Kogar A, Rak M S, Vig S, Husain A A, Flicker F, Joe Y I, Venema L, MacDougall G J, Chiang T C, Fradkin E, van Wezel J, Abbamonte P 2017 *Science* **358** 1314
 [8] Lin Z, Wang C, Balassis A, Echeverry J P, Vasenko A S, Silkin V M, Chulkov E V, Shi Y, Zhang J, Guo J, Zhu X 2022 *Phys. Rev. Lett.* **129** 187601
 [9] Jia Y, Wang P, Chiu C L, Song Z, Yu G, Jäck B, Lei S, Klemenz S, Cevallos F A, Onyszczyk M, Fishchenko N, Liu X, Farahi G, Xie F, Xu Y, Watanabe K, Taniguchi T, Bernevig B A, Cava R J, Schoop L M, Yazdani A, Wu S 2022 *Nat. Phys.* **18** 87
 [10] Sun B, Zhao W, Palomaki T, Fei Z, Runburg E, Malinowski P, Huang X, Cenker J, Cui Y T, Chu J H, Xu X, Ataei S S, Varsano D, Palumbo M, Molinari E, Rontani M, Cobden D H 2022 *Nat. Phys.* **18** 94
 [11] Bucher B, Steiner P, Wächter P 1991 *Phys. Rev. Lett.* **67** 2717
 [12] Du L, Li X, Lou W, Sullivan G, Chang K, Kono J, Du R R 2017 *Nat. Commun.* **8** 1971
 [13] Mazza G, Rösner M, Windgätter L, Latini S, Hübener H, Millis A J, Rubio A, Georges A 2020 *Phys. Rev. Lett.* **124** 197601
 [14] Baldini E, Zong A, Choi D, Lee C, Michael M H, Windgätter L, Mazin I I, Latini S, Azoury D, Lv B, Kogar A, Wang Y, Lu Y, Takayama T, Takagi H, Millis A J, Rubio A, Demler E, Gedik N 2020 arXiv 2007.02909 [cond-mat.str-el]
 [15] Suen Y W, Engel L W, Santos M B, Shayegan M, Tsui D C 1992 *Phys. Rev. Lett.* **68** 1379
 [16] Spielman I B, Eisenstein J P, Pfeiffer L N, West K W 2000 *Phys. Rev. Lett.* **84** 5808
 [17] Kellogg M, Spielman I B, Eisenstein J P, Pfeiffer L N, West K W 2002 *Phys. Rev. Lett.* **88** 126804
 [18] Eisenstein J P, MacDonald A H 2004 *Nature* **432** 691
 [19] Eisenstein J P 2014 *Annu. Rev. Condens. Matter Phys.* **5** 159
 [20] Wang L, Meric I, Huang P Y, Gao Q, Gao Y, Tran H, Taniguchi T, Watanabe K, Campos L M, Muller D A, Guo J, Kim P, Hone J, Shepard K L, Dean C R 2013 *Science* **342** 614
 [21] Novoselov K S, Mishchenko A, Carvalho A, Castro Neto A H 2016 *Science* **353** aac9439
 [22] Li J I A, Taniguchi T, Watanabe K, Hone J, Dean C R 2017 *Nat. Phys.* **13** 751
 [23] Liu X, Watanabe K, Taniguchi T, Halperin B I, Kim P 2017 *Nat. Phys.* **13** 746
 [24] Liu X, Li J I A, Watanabe K, Taniguchi T, Hone J, Halperin B I, Kim P, Dean C R 2022 *Science* **375** 205
 [25] Yu H, Liu G B, Tang J, Xu X, Yao W 2017 *Sci. Adv.* **3** e1701696
 [26] Li G, Luican A, Lopes dos Santos J M B, Castro Neto A H, Reina A, Kong J, Andrei E Y 2010 *Nat. Phys.* **6** 109
 [27] Bistritzer R, MacDonald A H 2011 *Proc. Natl. Acad. Sci.* **108** 12233
 [28] Wu F, Lovorn T, MacDonald A H 2017 *Phys. Rev. Lett.* **118** 147401
 [29] Cao Y, Fatemi V, Demir A, Fang S, Tomarken S L, Luo J Y, Sanchez-Yamagishi J D, Watanabe K, Taniguchi T, Kaxiras E, Ashoori R C, Jarillo-Herrero P 2018 *Nature* **556** 80
 [30] Cao Y, Fatemi V, Fang S, Watanabe K, Taniguchi T, Kaxiras E, Jarillo-Herrero P 2018 *Nature* **556** 43
 [31] Chittari B L, Chen G, Zhang Y, Wang F, Jung J 2019 *Phys.*

- Rev. Lett.* **122** 016401
- [32] Alexeev E M, Ruiz-Tijerina D A, Danovich M, Hamer M J, Terry D J, Nayak P K, Ahn S, Pak S, Lee J, Sohn J I, Molas M R, Koperski M, Watanabe K, Taniguchi T, Novoselov K S, Gorbachev R V, Shin H S, Fal'ko V I, Tartakovskii A I **2019** *Nature* **567** 81
- [33] Jin C, Regan E C, Yan A, Iqbal Bakti Utama M, Wang D, Zhao S, Qin Y, Yang S, Zheng Z, Shi S, Watanabe K, Taniguchi T, Tongay S, Zettl A, Wang F **2019** *Nature* **567** 76
- [34] Seyler K L, Rivera P, Yu H, Wilson N P, Ray E L, Mandrus D G, Yan J, Yao W, Xu X **2019** *Nature* **567** 66
- [35] Tran K, Moody G, Wu F, Lu X, Choi J, Kim K, Rai A, Sanchez D A, Quan J, Singh A, Embley J, Zepeda A, Campbell M, Autry T, Taniguchi T, Watanabe K, Lu N, Banerjee S K, Silverman K L, Kim S, Tutuc E, Yang L, MacDonald A H, Li X **2019** *Nature* **567** 71
- [36] Chen G, Jiang L, Wu S, Lyu B, Li H, Chittari B L, Watanabe K, Taniguchi T, Shi Z, Jung J, Zhang Y, Wang F **2019** *Nat. Phys.* **15** 237
- [37] Yankowitz M, Chen S, Polshyn H, Zhang Y, Watanabe K, Taniguchi T, Graf D, Young A F, Dean C R **2019** *Science* **363** 1059
- [38] Yoo H, Engelke R, Carr S, Fang S, Zhang K, Cazeaux P, Sung S H, Hovden R, Tsen A W, Taniguchi T, Watanabe K, Yi G C, Kim M, Luskin M, Tadmor E B, Kaxiras E, Kim P **2019** *Nat. Mater.* **18** 448
- [39] Tomarken S L, Cao Y, Demir A, Watanabe K, Taniguchi T, Jarillo-Herrero P, Ashoori R C **2019** *Phys. Rev. Lett.* **123** 046601
- [40] Chen G, Sharpe A L, Gallagher P, Rosen I T, Fox E J, Jiang L, Lyu B, Li H, Watanabe K, Taniguchi T, Jung J, Shi Z, Goldhaber-Gordon D, Zhang Y, Wang F **2019** *Nature* **572** 215
- [41] Kerelsky A, McGilly L J, Kennes D M, Xian L, Yankowitz M, Chen S, Watanabe K, Taniguchi T, Hone J, Dean C, Rubio A, Pasupathy A N **2019** *Nature* **572** 95
- [42] Xie Y, Lian B, Jäck B, Liu X, Chiu C L, Watanabe K, Taniguchi T, Bernevig B A, Yazdani A **2019** *Nature* **572** 101
- [43] Sharpe A L, Fox E J, Barnard A W, Finney J, Watanabe K, Taniguchi T, Kastner M A, Goldhaber-Gordon D **2019** *Science* **365** 605
- [44] Jiang Y, Lai X, Watanabe K, Taniguchi T, Haule K, Mao J, Andrei E Y **2019** *Nature* **573** 91
- [45] Lu X, Stepanov P, Yang W, Xie M, Aamir M A, Das I, Urgell C, Watanabe K, Taniguchi T, Zhang G, Bachtold A, MacDonald A H, Efetov D K **2019** *Nature* **574** 653
- [46] Polshyn H, Yankowitz M, Chen S, Zhang Y, Watanabe K, Taniguchi T, Dean C R, Young A F **2019** *Nat. Phys.* **15** 1011
- [47] Choi Y, Kemmer J, Peng Y, Thomson A, Arora H, Polski R, Zhang Y, Ren H, Alicea J, Refael G, von Oppen F, Watanabe K, Taniguchi T, Nadj-Perge S **2019** *Nat. Phys.* **15** 1174
- [48] Finney N R, Yankowitz M, Muralettharan L, Watanabe K, Taniguchi T, Dean C R, Hone J **2019** *Nat. Nanotechnol.* **14** 1029
- [49] Jin C, Regan E C, Wang D, Iqbal Bakti Utama M, Yang C S, Cain J, Qin Y, Shen Y, Zheng Z, Watanabe K, Taniguchi T, Tongay S, Zettl A, Wang F **2019** *Nat. Phys.* **15** 1140
- [50] Burg G W, Zhu J, Taniguchi T, Watanabe K, MacDonald A H, Tutuc E **2019** *Phys. Rev. Lett.* **123** 197702
- [51] Karni O, Barré E, Lau S C, Gillen R, Ma E Y, Kim B, Watanabe K, Taniguchi T, Maultzsch J, Barmak K, Page R H, Heinz T F **2019** *Phys. Rev. Lett.* **123** 247402
- [52] Lu X, Tang J, Wallbank J R, Wang S, Shen C, Wu S, Chen P, Yang W, Zhang J, Watanabe K, Taniguchi T, Yang R, Shi D, Efetov D K, Fal'ko V I, Zhang G **2020** *Phys. Rev. B* **102** 045409
- [53] Cao Y, Chowdhury D, Rodan-Legrain D, Rubies-Bigorda O, Watanabe K, Taniguchi T, Senthil T, Jarillo-Herrero P **2020** *Phys. Rev. Lett.* **124** 076801
- [54] Serlin M, Tschirhart C L, Polshyn H, Zhang Y, Zhu J, Watanabe K, Taniguchi T, Balents L, Young A F **2020** *Science* **367** 900
- [55] Chen G, Sharpe A L, Fox E J, Zhang Y H, Wang S, Jiang L, Lyu B, Li H, Watanabe K, Taniguchi T, Shi Z, Senthil T, Goldhaber-Gordon D, Zhang Y, Wang F **2020** *Nature* **579** 56
- [56] Regan E C, Wang D, Jin C, Bakti Utama M I, Gao B, Wei X, Zhao S, Zhao W, Zhang Z, Yumigeta K, Blei M, Carlström J D, Watanabe K, Taniguchi T, Tongay S, Crommie M, Zettl A, Wang F **2020** *Nature* **579** 359
- [57] Tang Y, Li L, Li T, Xu Y, Liu S, Barmak K, Watanabe K, Taniguchi T, MacDonald A H, Shan J, Mak K F **2020** *Nature* **579** 353
- [58] Shimazaki Y, Schwartz I, Watanabe K, Taniguchi T, Kroner M, Imamoğlu A **2020** *Nature* **580** 472
- [59] Shen C, Chu Y, Wu Q, Li N, Wang S, Zhao Y, Tang J, Liu J, Tian J, Watanabe K, Taniguchi T, Yang R, Meng Z Y, Shi D, Yazeyev O V, Zhang G **2020** *Nat. Phys.* **16** 520
- [60] Uri A, Grover S, Cao Y, Crosse J A, Bagani K, Rodan-Legrain D, Myasoedov Y, Watanabe K, Taniguchi T, Moon P, Koshino M, Jarillo-Herrero P, Zeldov E **2020** *Nature* **581** 47
- [61] Wong D, Nuckolls K P, Oh M, Lian B, Xie Y, Jeon S, Watanabe K, Taniguchi T, Bernevig B A, Yazdani A **2020** *Nature* **582** 198
- [62] Zondiner U, Rozen A, Rodan-Legrain D, Cao Y, Queiroz R, Taniguchi T, Watanabe K, Oreg Y, von Oppen F, Stern A, Berg E, Jarillo-Herrero P, Ilani S **2020** *Nature* **582** 203
- [63] Arora H S, Polski R, Zhang Y, Thomson A, Choi Y, Kim H, Lin Z, Wilson I Z, Xu X, Chu J H, Watanabe K, Taniguchi T, Alicea J, Nadj-Perge S **2020** *Nature* **583** 379
- [64] Cao Y, Rodan-Legrain D, Rubies-Bigorda O, Park J M, Watanabe K, Taniguchi T, Jarillo-Herrero P **2020** *Nature* **583** 215
- [65] Liu X, Hao Z, Khalaf E, Lee J Y, Ronen Y, Yoo H, Haei Najafabadi D, Watanabe K, Taniguchi T, Vishwanath A, Kim P **2020** *Nature* **583** 221
- [66] McGilly L J, Kerelsky A, Finney N R, Shapovalov K, Shih E M, Ghiotto A, Zeng Y, Moore S L, Wu W, Bai Y, Watanabe K, Taniguchi T, Stengel M, Zhou L, Hone J, Zhu X, Basov D N, Dean C, Dreyer C E, Pasupathy A N **2020** *Nat. Nanotechnol.* **15** 580
- [67] Stepanov P, Das I, Lu X, Fahimmiya A, Watanabe K, Taniguchi T, Koppens F H L, Lischner J, Levitov L, Efetov D K **2020** *Nature* **583** 375
- [68] Wang L, Shih E M, Ghiotto A, Xian L, Rhodes D A, Tan C, Claassen M, Kennes D M, Bai Y, Kim B, Watanabe K, Taniguchi T, Zhu X, Hone J, Rubio A, Pasupathy A N, Dean C R **2020** *Nat. Mater.* **19** 861
- [69] Saito Y, Ge J, Watanabe K, Taniguchi T, Young A F **2020** *Nat. Phys.* **16** 926
- [70] Bai Y, Zhou L, Wang J, Wu W, McGilly L J, Halbertal D, Lo C F B, Liu F, Ardelean J, Rivera P, Finney N R, Yang X C, Basov D N, Yao W, Xu X, Hone J, Pasupathy A N,

- Zhu X Y 2020 *Nat. Mater.* **19** 1068
- [71] Chu Z, Regan E C, Ma X, Wang D, Xu Z, Utama M I B, Yumigeta K, Blei M, Watanabe K, Taniguchi T, Tongay S, Wang F, Lai K 2020 *Phys. Rev. Lett.* **125** 186803
- [72] Xu Y, Liu S, Rhodes D A, Watanabe K, Taniguchi T, Hone J, Elser V, Mak K F, Shan J 2020 *Nature* **587** 214
- [73] Zhang Z, Wang Y, Watanabe K, Taniguchi T, Ueno K, Tutuc E, LeRoy B J 2020 *Nat. Phys.* **16** 1093
- [74] Zhang L, Zhang Z, Wu F, Wang D, Gogna R, Hou S, Watanabe K, Taniguchi T, Kulkarni K, Kuo T, Forrest S R, Deng H 2020 *Nat. Commun.* **11** 5888
- [75] Nuckolls K P, Oh M, Wong D, Lian B, Watanabe K, Taniguchi T, Bernevig B A, Yazdani A 2020 *Nature* **588** 610
- [76] Polshyn H, Zhu J, Kumar M A, Zhang Y, Yang F, Tschirhart C L, Serlin M, Watanabe K, Taniguchi T, MacDonald A H, Young A F 2020 *Nature* **588** 66
- [77] Lee K, Utama M I B, Kahn S, Samudrala A, Leconte N, Yang B, Wang S, Watanabe K, Taniguchi T, Altoé M V P, Zhang G, Weber-Bargioni A, Crommie M, Ashby P D, Jung J, Wang F, Zettl A 2020 *Sci. Adv.* **6** eabd1919
- [78] He M, Li Y, Cai J, Liu Y, Watanabe K, Taniguchi T, Xu X, Yankowitz M 2021 *Nat. Phys.* **17** 26
- [79] Tang Y, Gu J, Liu S, Watanabe K, Taniguchi T, Hone J, Mak K F, Shan J 2021 *Nat. Nanotechnol.* **16** 52
- [80] Park J M, Cao Y, Watanabe K, Taniguchi T, Jarillo-Herrero P 2021 *Nature* **590** 249
- [81] Utama M I B, Koch R J, Lee K, Leconte N, Li H, Zhao S, Jiang L, Zhu J, Watanabe K, Taniguchi T, Ashby P D, Weber-Bargioni A, Zettl A, Jozwiak C, Jung J, Rotenberg E, Bostwick A, Wang F 2021 *Nat. Phys.* **17** 184
- [82] Chen S, He M, Zhang Y H, Hsieh V, Fei Z, Watanabe K, Taniguchi T, Cobden D H, Xu X, Dean C R, Yankowitz M 2021 *Nat. Phys.* **17** 374
- [83] Zhang L, Wu F, Hou S, Zhang Z, Chou Y H, Watanabe K, Taniguchi T, Forrest S R, Deng H 2021 *Nature* **591** 61
- [84] Hao Z, Zimmerman A M, Ledwith P, Khalaf E, Najafabadi D H, Watanabe K, Taniguchi T, Vishwanath A, Kim P 2021 *Science* **371** 1133
- [85] Liu X, Wang Z, Watanabe K, Taniguchi T, Vafek O, Li J I A 2021 *Science* **371** 1261
- [86] Park J M, Cao Y, Watanabe K, Taniguchi T, Jarillo-Herrero P 2021 *Nature* **592** 43
- [87] Rozen A, Park J M, Zondiner U, Cao Y, Rodan-Legrain D, Taniguchi T, Watanabe K, Oreg Y, Stern A, Berg E, Jarillo-Herrero P, Ilani S 2021 *Nature* **592** 214
- [88] Saito Y, Ge J, Rademaker L, Watanabe K, Taniguchi T, Abanin D A, Young A F 2021 *Nat. Phys.* **17** 478
- [89] Saito Y, Yang F, Ge J, Liu X, Taniguchi T, Watanabe K, Li J I A, Berg E, Young A F 2021 *Nature* **592** 220
- [90] Han T, Yang J, Zhang Q, Wang L, Watanabe K, Taniguchi T, McEuen P L, Ju L 2021 *Phys. Rev. Lett.* **126** 146402
- [91] Cao Y, Rodan-Legrain D, Park J M, Yuan N F Q, Watanabe K, Taniguchi T, Fernandes R M, Fu L, Jarillo-Herrero P 2021 *Science* **372** 264
- [92] Li Y, Dietrich S, Forsythe C, Taniguchi T, Watanabe K, Moon P, Dean C R 2021 *Nat. Nanotechnol.* **16** 525
- [93] Xu S, Al Ezzi M M, Balakrishnan N, Garcia-Ruiz A, Tsim B, Mullan C, Barrier J, Xin N, Piot B A, Taniguchi T, Watanabe K, Carvalho A, Mishchenko A, Geim A K, Fal'ko V I, Adam S, Neto A H C, Novoselov K S, Shi Y 2021 *Nat. Phys.* **17** 619
- [94] Xu Y, Horn C, Zhu J, Tang Y, Ma L, Li L, Liu S, Watanabe K, Taniguchi T, Hone J C, Shan J, Mak K F 2021 *Nat. Mater.* **20** 645
- [95] Liu X, Chiu C L, Lee J Y, Farahi G, Watanabe K, Taniguchi T, Vishwanath A, Yazdani A 2021 *Nat. Commun.* **12** 2732
- [96] Sharpe A L, Fox E J, Barnard A W, Finney J, Watanabe K, Taniguchi T, Kastner M A, Goldhaber-Gordon D 2021 *Nano Lett.* **21** 4299
- [97] Das I, Lu X, Herzog-Arbeitman J, Song Z D, Watanabe K, Taniguchi T, Bernevig B A, Efetov D K 2021 *Nat. Phys.* **17** 710
- [98] Huang X, Wang T, Miao S, Wang C, Li Z, Lian Z, Taniguchi T, Watanabe K, Okamoto S, Xiao D, Shi S F, Cui Y T 2021 *Nat. Phys.* **17** 715
- [99] Liu E, Barré E, van Baren J, Wilson M, Taniguchi T, Watanabe K, Cui Y T, Gabor N M, Heinz T F, Chang Y C, Lui C H 2021 *Nature* **594** 46
- [100] Shabani S, Halbertal D, Wu W, Chen M, Liu S, Hone J, Yao W, Basov D N, Zhu X, Pasupathy A N 2021 *Nat. Phys.* **17** 720
- [101] Tschirhart C L, Serlin M, Polshyn H, Shragai A, Xia Z, Zhu J, Zhang Y, Watanabe K, Taniguchi T, Huber M E, Young A F 2021 *Science* **372** 1323
- [102] Cao Y, Park J M, Watanabe K, Taniguchi T, Jarillo-Herrero P 2021 *Nature* **595** 526
- [103] Jin C, Tao Z, Li T, Xu Y, Tang Y, Zhu J, Liu S, Watanabe K, Taniguchi T, Hone J C, Fu L, Shan J, Mak K F 2021 *Nat. Mater.* **20** 940
- [104] Li H, Li S, Naik M H, Xie J, Li X, Wang J, Regan E, Wang D, Zhao W, Zhao S, Kahn S, Yumigeta K, Blei M, Taniguchi T, Watanabe K, Tongay S, Zettl A, Louie S G, Wang F, Crommie M F 2021 *Nat. Mater.* **20** 945
- [105] Rodan-Legrain D, Cao Y, Park J M, de la Barrera S C, Randeria M T, Watanabe K, Taniguchi T, Jarillo-Herrero P 2021 *Nat. Nanotechnol.* **16** 769
- [106] Quan J, Linhart L, Lin M L, Lee D, Zhu J, Wang C Y, Hsu W T, Choi J, Embley J, Young C, Taniguchi T, Watanabe K, Shih C K, Lai K, MacDonald A H, Tan P H, Libisch F, Li X 2021 *Nat. Mater.* **20** 1100
- [107] He M, Zhang Y H, Li Y, Fei Z, Watanabe K, Taniguchi T, Xu X, Yankowitz M 2021 *Nat. Commun.* **12** 4727
- [108] Ghiotto A, Shih E M, Pereira G S S G, Rhodes D A, Kim B, Zang J, Millis A J, Watanabe K, Taniguchi T, Hone J C, Wang L, Dean C R, Pasupathy A N 2021 *Nature* **597** 345
- [109] Li T, Jiang S, Li L, Zhang Y, Kang K, Zhu J, Watanabe K, Taniguchi T, Chowdhury D, Fu L, Shan J, Mak K F 2021 *Nature* **597** 350
- [110] Li H, Li S, Regan E C, Wang D, Zhao W, Kahn S, Yumigeta K, Blei M, Taniguchi T, Watanabe K, Tongay S, Zettl A, Crommie M F, Wang F 2021 *Nature* **597** 650
- [111] Hesp N C H, Torre I, Rodan-Legrain D, Novelli P, Cao Y, Carr S, Fang S, Stepanov P, Barcons-Ruiz D, Herzig Sheinfux H, Watanabe K, Taniguchi T, Efetov D K, Kaxiras E, Jarillo-Herrero P, Polini M, Koppens F H L 2021 *Nat. Phys.* **17** 1162
- [112] Li H, Li S, Naik M H, Xie J, Li X, Regan E, Wang D, Zhao W, Yumigeta K, Blei M, Taniguchi T, Watanabe K, Tongay S, Zettl A, Louie S G, Crommie M F, Wang F 2021 *Nat. Phys.* **17** 1114
- [113] Li T, Zhu J, Tang Y, Watanabe K, Taniguchi T, Elser V, Shan J, Mak K F 2021 *Nat. Nanotechnol.* **16** 1068
- [114] Zhou H, Xie T, Ghazaryan A, Holder T, Ehrets J R, Spanton E M, Taniguchi T, Watanabe K, Berg E, Serbyn M, Young A F 2021 *Nature* **598** 429

- [115] Zhou H, Xie T, Taniguchi T, Watanabe K, Young A F 2021 *Nature* **598** 434
- [116] Pierce A T, Xie Y, Park J M, Khalaf E, Lee S H, Cao Y, Parker D E, Forrester P R, Chen S, Watanabe K, Taniguchi T, Vishwanath A, Jarillo-Herrero P, Yacoby A 2021 *Nat. Phys.* **17** 1210
- [117] Wang X, Zhu J, Seyler K L, Rivera P, Zheng H, Wang Y, He M, Taniguchi T, Watanabe K, Yan J, Mandrus D G, Gamelin D R, Yao W, Xu X 2021 *Nat. Nanotechnol.* **16** 1208
- [118] Song T, Sun Q C, Anderson E, Wang C, Qian J, Taniguchi T, Watanabe K, McGuire M A, Stöhr R, Xiao D, Cao T, Wrachtrup J, Xu X 2021 *Science* **374** 1140
- [119] Choi Y, Kim H, Lewandowski C, Peng Y, Thomson A, Polski R, Zhang Y, Watanabe K, Taniguchi T, Alicea J, Nadj-Perge S 2021 *Nat. Phys.* **17** 1375
- [120] Li T, Jiang S, Shen B, Zhang Y, Li L, Tao Z, Devakul T, Watanabe K, Taniguchi T, Fu L, Shan J, Mak K F 2021 *Nature* **600** 641
- [121] Oh M, Nuckolls K P, Wong D, Lee R L, Liu X, Watanabe K, Taniguchi T, Yazdani A 2021 *Nature* **600** 240
- [122] Xie Y, Pierce A T, Park J M, Parker D E, Khalaf E, Ledwith P, Cao Y, Lee S H, Chen S, Forrester P R, Watanabe K, Taniguchi T, Vishwanath A, Jarillo-Herrero P, Yacoby A 2021 *Nature* **600** 439
- [123] Polshyn H, Zhang Y, Kumar M A, Soejima T, Ledwith P, Watanabe K, Taniguchi T, Vishwanath A, Zaletel M P, Young A F 2022 *Nat. Phys.* **18** 42
- [124] Wang Y, Herzog-Arbeitman J, Burg G W, Zhu J, Watanabe K, Taniguchi T, MacDonald A H, Bernevig B A, Tutuc E 2022 *Nat. Phys.* **18** 48
- [125] Lin J X, Zhang Y H, Morissette E, Wang Z, Liu S, Rhodes D, Watanabe K, Taniguchi T, Hone J, Li J I A 2022 *Science* **375** 437
- [126] Xu Y, Ray A, Shao Y T, Jiang S, Lee K, Weber D, Goldberger J E, Watanabe K, Taniguchi T, Muller D A, Mak K F, Shan J 2022 *Nat. Nanotechnol.* **17** 143
- [127] Zhou H, Holleis L, Saito Y, Cohen L, Huynh W, Patterson C L, Yang F, Taniguchi T, Watanabe K, Young A F 2022 *Science* **375** 774
- [128] Karni O, Barré E, Pareek V, Georganas J D, Man M K L, Sahoo C, Bacon D R, Zhu X, Ribeiro H B, O'Beirne A L, Hu J, Al-Mahboob A, Abdelrasoul M M M, Chan N S, Karmakar A, Winchester A J, Kim B, Watanabe K, Taniguchi T, Barmak K, Madéo J, da Jornada F H, Heinz T F, Dani K M 2022 *Nature* **603** 247
- [129] Yang J, Chen G, Han T, Zhang Q, Zhang Y H, Jiang L, Lyu B, Li H, Watanabe K, Taniguchi T, Shi Z, Senthil T, Zhang Y, Wang F, Ju L 2022 *Science* **375** 1295
- [130] Wang X, Xiao C, Park H, Zhu J, Wang C, Taniguchi T, Watanabe K, Yan J, Xiao D, Gamelin D R, Yao W, Xu X 2022 *Nature* **604** 468
- [131] Li Q, Cheng B, Chen M, Xie B, Xie Y, Wang P, Chen F, Liu Z, Watanabe K, Taniguchi T, Liang S J, Wang D, Wang C, Wang Q H, Liu J, Miao F 2022 *Nature* **609** 479
- [132] Turkel S, Swann J, Zhu Z, Christos M, Watanabe K, Taniguchi T, Sachdev S, Scheurer M S, Kaxiras E, Dean C R, Pasupathy A N 2022 *Science* **376** 193
- [133] Finney J, Sharpe A L, Fox E J, Hsueh C L, Parker D E, Yankowitz M, Chen S, Watanabe K, Taniguchi T, Dean C R, Vishwanath A, Kastner M A, Goldhaber-Gordon D 2022 *Proc. Natl. Acad. Sci.* **119** e2118482119
- [134] Barré E, Karni O, Liu E, O'Beirne A L, Chen X, Ribeiro H B, Yu L, Kim B, Watanabe K, Taniguchi T, Barmak K, Lui C H, Refaely-Abramson S, da Jornada F H, Heinz T F 2022 *Science* **376** 406
- [135] Liu X, Zhang N J, Watanabe K, Taniguchi T, Li J I A 2022 *Nat. Phys.* **18** 522
- [136] Jaoui A, Das I, Di Battista G, et al. 2022 *Nat. Phys.* **18** 633
- [137] Kim H, Choi Y, Lewandowski C, Thomson A, Zhang Y, Polski R, Watanabe K, Taniguchi T, Alicea J, Nadj-Perge S 2022 *Nature* **606** 494
- [138] Liu L, Zhang S, Chu Y, Shen C, Huang Y, Yuan Y, Tian J, Tang J, Ji Y, Yang R, Watanabe K, Taniguchi T, Shi D, Liu J, Yang W, Zhang G 2022 *Nat. Commun.* **13** 3292
- [139] de la Barrera S C, Aronson S, Zheng Z, Watanabe K, Taniguchi T, Ma Q, Jarillo-Herrero P, Ashoori R 2022 *Nat. Phys.* **18** 771
- [140] Zhao W, Kang K, Li L, Tschirhart C, Redekop E, Watanabe K, Taniguchi T, Young A, Shan J, Mak K F 2022 *arXiv* 2207.02312 [cond-mat. mes-hall]
- [141] Tang Y, Gu J, Liu S, Watanabe K, Taniguchi T, Hone J C, Mak K F, Shan J 2022 *Nat. Commun.* **13** 4271
- [142] Burg G W, Khalaf E, Wang Y, Watanabe K, Taniguchi T, Tutuc E 2022 *Nat. Mater.* **21** 884
- [143] Park J M, Cao Y, Xia L Q, Sun S, Watanabe K, Taniguchi T, Jarillo-Herrero P 2022 *Nat. Mater.* **21** 877
- [144] Naik M H, Regan E C, Zhang Z, et al. 2022 *Nature* **609** 52
- [145] Xu Y, Kang K, Watanabe K, Taniguchi T, Mak K F, Shan J 2022 *Nat. Nanotechnol.* **17** 934
- [146] Lin J X, Siriviboon P, Scammell H D, Liu S, Rhodes D, Watanabe K, Taniguchi T, Hone J, Scheurer M S, Li J I A 2022 *Nat. Phys.* **18** 1221
- [147] Zhao W, Shen B, Tao Z, Han Z, Kang K, Watanabe K, Taniguchi T, Mak K F, Shan J 2022 *arXiv* 2211.00263 [cond-mat. str-el]
- [148] Zhang M, Zhao X, Watanabe K, Taniguchi T, Zhu Z, Wu F, Li Y, Xu Y 2022 *Phys. Rev. X* **12** 041015
- [149] Susarla S, Naik M H, Blach D D, Zipfel J, Taniguchi T, Watanabe K, Huang L, Ramesh R, da Jornada F H, Louie S G, Ercius P, Raja A 2022 *Science* **378** 1235
- [150] Sood A, Haber J B, Carlström J, et al. 2023 *Nat. Nanotechnol.* **18** 29
- [151] Shen C, Ledwith P J, Watanabe K, Taniguchi T, Khalaf E, Vishwanath A, Efetov D K 2023 *Nat. Mater.* **22** 316
- [152] Lau C N, Bockrath M W, Mak K F, Zhang F 2022 *Nature* **602** 41
- [153] Zhang Z, Regan E C, Wang D, et al. 2022 *Nat. Phys.* **18** 1214
- [154] Gu J, Ma L, Liu S, Watanabe K, Taniguchi T, Hone J C, Shan J, Mak K F 2022 *Nat. Phys.* **18** 395
- [155] Chen D, Lian Z, Huang X, et al. 2022 *Nat. Phys.* **18** 1171
- [156] Shi Q, Shih E M, Rhodes D, Kim B, Barmak K, Watanabe K, Taniguchi T, Papić Z, Abanin D A, Hone J, Dean C R 2022 *Nat. Nanotechnol.* **17** 577
- [157] Zeng Y, Xia Z, Dery R, Watanabe K, Taniguchi T, Shan J, Mak K F 2023 *Nat. Mater.* **22** 175
- [158] Ma L, Nguyen P X, Wang Z, Zeng Y, Watanabe K, Taniguchi T, MacDonald A H, Mak K F, Shan J 2021 *Nature* **598** 585
- [159] Peelaers H, Van de Walle C G 2012 *Phys. Rev. B* **86** 241401
- [160] Raymond A, Robert J L, Bernard C 1979 *J. Phys. C Solid State Phys.* **12** 2289
- [161] Fogler M M, Butov L V, Novoselov K S 2014 *Nat. Commun.* **5** 4555
- [162] Wu F C, Xue F, MacDonald A H 2015 *Phys. Rev. B* **92** 165121

- [163] Wang Z, Rhodes D A, Watanabe K, Taniguchi T, Hone J C, Shan J, Mak K F 2019 *Nature* **574** 76
- [164] Zhang Y H, Sheng D N, Vishwanath A 2021 *Phys. Rev. Lett.* **127** 247701
- [165] Zeng Y, Wei N, MacDonald A H 2022 *Phys. Rev. B* **106** 165105
- [166] Xiong R, Nie J H, Brantly S L, Hays P, Sailus R, Watanabe K, Taniguchi T, Tongay S, Jin C 2022 arXiv 2207.10764 [cond-mat. str-el]
- [167] Bai Y, Liu S, Guo Y, Pack J, Wang J, Dean C R, Hone J, Zhu X Y 2022 arXiv 2207.09601 [cond-mat. mes-hall]

SPECIAL TOPIC—Two dimensional twisted moiré superlattice

Exciton insulator in a moiré lattice

Gu Jie ^{1)†} Ma Li-Guo ^{2)‡}

1) (*State Key Laboratory of Surface Physics, Department of Physics, Fudan University, Shanghai 200433, China*)

2) (*School of Applied and Engineering Physics, Cornell University, Ithaca 14850, USA*)

(Received 16 January 2023; revised manuscript received 9 February 2023)

Abstract

Interlayer electron and hole can be paired up through coulomb interaction to form an exciton insulator when their kinetic energy is substantially smaller than the interaction energy. The traditional platform to realize such an interlayer interaction is the double quantum well with dielectric material between electron and hole, for which an external magnetic field is required to generate Landau level flat bands that can reduce the kinetic energy of charged carriers. When both quantum wells are at the half filling of the lowest Landau level, the electron-electron repulsive interaction, by the particle-hole transformation in one well, will be equivalent to electron-hole attractive interaction, from which interlayer exciton and its condensation can emerge. In a two-dimensional twisted homostructure or an angle aligned heterostructure, there exists a moiré superlattice, in which bands are folded into the mini-Brillouin zone by the large moiré period. Gap opening at the boundary of mini-Brillouin zone can form the well-known moiré flat band. This review will discuss how to use the moiré flat bands to generate exciton insulator in the absence of external magnetic field in transitional metal dichalcogenide (TMD) moiré heterostructure. Unlike the double quantum well where symmetric well geometry is used, the moiré related sample can have multiple different geometries, including monolayer TMD-hexagonal boron nitride-moiré structure, moiré-moiré structure, and monolayer TMD-bilayer TMD structure. The carriers in those structures can be well tuned to locate equally in different layers, and particle-hole transformation in the moiré first Hubbard band can transform the interlayer repulsive coulomb interaction into attractive interaction, which is the same as that in quantum well under magnetic field. We will show that by using differential contrast reflection spectrum, interlayer photoluminescence, 2s exciton sensing, quantum capacitance and microwave impedance microscopy, the signature of exciton fluid can be identified. The excitonic coherence features in those structures will promise by using the coulomb drag technique and counter flow technique in future. In general, exciton in moiré lattice is a promising candidate for studying the Bose-Hubbard model in solids and can well realize exciton superfluidity, excitonic mott insulator as well as the crossover between them.

Keywords: exciton insulator, moiré lattice, flat band, two-dimensional semiconductor

PACS: 71.35.Lk, 71.27.+a, 71.35.-y, 73.21.Cd

DOI: 10.7498/aps.72.20230079

† Corresponding author. E-mail: gujielog@fudan.edu.cn

‡ Corresponding author. E-mail: liguo.ma@cornell.edu



莫尔晶格中的激子绝缘体

古杰 马立国

Exciton insulator in a moiré lattice

Gu Jie Ma Li-Guo

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 72, 067101 (2023) DOI: 10.7498/aps.72.20230079

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.72.20230079>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

二维材料平带的实现及其新奇量子物态

Flat bands and related novel quantum states in two-dimensional systems

物理学报. 2022, 71(12): 127302 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220225>

二维范德瓦耳斯半导体莫尔超晶格实验研究进展

Recent experimental research progress of two-dimensional van der Waals semiconductor moiré superlattices

物理学报. 2022, 71(12): 127309 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220347>

转角二维量子材料中平带相关的新奇电子态物性

Physical properties of novel electronic states related to flat band in twisted two-dimensional quantum materials

物理学报. 2022, 71(12): 127202 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220064>

一维螺旋型Se原子链中的Rashba效应和平带性质

Rashba effect and flat band property in one-dimensional helical Se atomic chain

物理学报. 2022, 71(14): 147102 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220646>

石墨烯莫尔超晶格的晶格弛豫与衬底效应

Lattice relaxation and substrate effects of graphene moiré superlattice

物理学报. 2022, 71(18): 187302 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220872>

电场调控双层WSe₂转角同质结激子莫尔势

Exciton moiré potential in twisted WSe₂ homobilayers modulated by electric field

物理学报. 2022, 71(17): 177301 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220664>

专题: 二维转角莫尔超晶格

莫尔石墨烯体系的新奇电学性质*

张世豪¹⁾ 解博¹⁾ 彭然¹⁾ 刘晓迁¹⁾ 吕昕¹⁾ 刘健鹏^{1)2)†}¹⁾ (上海科技大学物质科学与技术学院, 上海 201210)²⁾ (上海科技大学, 拓扑物理实验室, 上海 201210)

(2023年1月30日收到; 2023年3月13日收到修改稿)

讨论了转角双层石墨烯、转角多层石墨烯以及石墨烯-绝缘态异质结等体系中的电子结构、拓扑性质、关联物态、非线性光学响应、声子特征以及电声耦合效应等新奇物态和物性. 首先讨论了在转角石墨烯体系中普遍存在的拓扑非平庸的平带和轨道铁磁性. 其中, 魔角双层石墨烯中的拓扑平带可以从零朗道能级的图像去理解. 该图像可以很简明地解释实验上观测到的量子反常霍尔效应、关联绝缘态等新奇现象. 这些拓扑平带也可以带来接近量子化的拓扑压电响应, 可以用来定量地测量莫尔石墨烯中平带的谷陈数. 转角多层石墨烯和交错转角多层石墨烯体系也存在一些普适的手性分解规则, 可快速判断这类转角石墨烯体系中低能电子结构特征. 然后进一步讨论了魔角双层石墨烯和转角多层石墨烯中的关联绝缘态、密度波态、向列序态以及单粒子激发谱的级联转变等新奇物性, 并提出非线性光学响应可以当作区分各类“无特征”关联绝缘态的实验探针. 其次讨论了转角双层石墨烯体系的莫尔声子性质以及非平庸的电声耦合效应. 最后, 讨论了能带对齐的石墨烯和绝缘衬底形成的异质结体系中的新奇物理图景, 并对二维材料莫尔异质结体系中的新奇物性做了总结和展望.

关键词: 莫尔石墨烯异质结, 拓扑物理, 关联物态, 莫尔声子, 压电响应, 非线性光学响应**PACS:** 73.22.Pr, 73.21.Cd, 73.22.Gk, 74.78.Fk**DOI:** 10.7498/aps.72.20230120

1 引言

自从石墨烯被发现以来^[1-3], 二维材料体系逐渐成为凝聚态物理研究的主要领域之一. 石墨烯是其中具有代表性的材料, 它是一种具有蜂窝状六角晶格的单层碳原子材料, 其单层的低能电子激发具有狄拉克费米子的线性色散, 因此具有多种新奇物性, 如非平庸的电子间相互作用效应、非常规朗道能级以及 Klein 隧穿效应等^[4,5]. 随后, 人们相继制造出氮化硼^[6]、层状过渡金属硫化物^[7-10]、二维磁性半导体^[11,12]等新型二维材料体系. 由于沿面外方向的厚度很薄, 二维材料的各类物理性质很容易被垂直门电压调控, 进而展现出高度可调控的丰富

物性.

此外, 由于二维体系层间呈现出较弱的范德瓦耳斯耦合, 所以犹如乐高积木一样, 研究人员容易调控二维体系的层间堆垛方式和扭转角度. 例如, 当两层石墨烯之间互相扭转一个小角度时, 可以形成长周期的双层石墨烯莫尔超晶格体系. 2011年, Bistritzer 和 Macdonald 在理论上发现^[13], 当扭转角度达到 1.05° 时, 该转角双层石墨烯体系每个能谷在电荷中性点附近都会出现两条能带宽度极小的平带. 因此 1.05° 亦被称作为“魔角”. 魔角双层石墨烯的平带电子由于其动能被极大程度地抑制, 因此被预测为研究电子间强库仑相互作用效应的一个理想平台^[13]. 2018年麻省理工学院 Jarillo-Herrero 课题组^[14]在实验室成功制备出魔角双层石墨烯.

* 国家自然科学基金 (批准号: 12174257)、国家重点研发计划 (批准号: 2020YFA0309601) 和上海科技大学启动经费资助的课题.

† 通信作者. E-mail: liujp@shanghaitech.edu.cn

在平带半填充时,他们在魔角双层石墨烯中观测到了由电子间库仑相互作用导致的关联绝缘态,并且在绝缘态附近发现超导相^[15].实验上对魔角双层石墨烯体系中的关联绝缘态^[14,16-24]和超导态^[15,16,22-27]的密集观测,让魔角双层石墨烯成为凝聚态物理和纳米材料科学领域的一个新的研究热点,推动转角电子学成为凝聚态物理中新兴的方向^[28,29].更进一步,当魔角双层石墨烯的平带被部分整数填充时,人们还观测到量子反常霍尔效应^[21,30-36]以及与之相关的轨道磁性^[21,37-39];在分数填充时则观测到了可能的密度波态和分数陈绝缘体态^[40].这一系列与拓扑物理有关的现象表明,魔角双层石墨烯的平带还具有非平庸的拓扑性质^[41-45].

转角石墨烯的研究领域由魔角双层石墨烯体系开始,向更多各种各样的莫尔石墨烯体系进发.理论学家预测了在转角多层石墨烯体系和石墨烯-氮化硼莫尔异质结体系中均具有拓扑非平庸的平带^[46-60].这些拓扑平带普遍具有非零的谷陈数,并且拓扑性质可以被垂直电场高度调控.上述转角多层石墨烯和莫尔石墨烯异质结体系在实验上也展现出多种丰富的物态和物性.如近期实验在转角双层-单层石墨烯体系中观测到轨道陈绝缘态^[61-63]和零陈数的关联绝缘态^[61,64,65];在转角双层-双层石墨烯体系中观测到自旋极化态^[66-69]、向列序态^[70]、广义维格纳晶格和奇异金属态^[71]等新奇物态,在交错转角三层石墨烯中则发现了平带和狄拉克锥共存的奇特电子结构^[72]、违反泡利极限的非常规超导态^[73-76]等新奇现象.而在氮化硼-石墨烯-氮化硼莫尔异质结中观测到了关联绝缘态^[77],在氮化硼-三层石墨烯莫尔异质结中,也观测到了关联绝缘态^[78]和量子反常霍尔效应^[79].总而言之,非平庸拓扑和强库仑相互作用效应,凝聚态物理中的这两个核心概念在莫尔石墨烯体系中交汇在一起,进而在这类体系中涌现出一系列新奇的物理现象.

本综述将首先讨论转角双层石墨烯和转角多层石墨烯体系的非相互作用电子性质.转角石墨烯体系中普遍存在着拓扑非平庸的平带.其中,魔角双层石墨烯中的拓扑平带可以从零费朗道能级的图像去理解.而在转角多层石墨烯中普遍存在具有非零谷陈数的拓扑平带,其平带波函数携带莫尔尺度上的手性电流,进而可以通过自发破缺时间反演对称性的机制产生轨道铁磁态.而关于转角多层石墨烯和交错转角多层石墨烯,则有着普适的手性分

解规则,可快速判断这类转角石墨烯体系中低能电子结构特征^[55,80].而且,转角石墨烯体系中具有非零谷陈数的拓扑平带能够带来接近量子化的拓扑压电响应,可以用来定量地测量莫尔石墨烯中平带的谷陈数^[81].接下来本文将继续讨论魔角双层石墨烯中的关联绝缘态、密度波态以及单粒子激发谱的级联转变等新奇物性,并提出非线性光学响应可当作区分各类“无特征”关联绝缘态的实验探针^[82].而在各类转角多层石墨烯体系中,平带在半填充时往往存在着自旋极化的向列序态,并且垂直磁场可以诱发这类体系从自旋极化向列序态到谷极化陈绝缘体态的拓扑相变^[83,84].而针对转角双层石墨烯中声子性质的深度学习分子动力学研究,发现了若干极低频率的面外“弯曲”声子模式,并且这些极低频模式与电子耦合可能导致关联绝缘态以及电四极矩序^[85].最后,本综述将讨论一类新型石墨烯异质结体系:能带对齐的石墨烯和绝缘衬底形成的异质结体系中的新奇物理.通过门电压调控的电荷转移,在绝缘衬底上的载流子由于长程库仑作用可以形成长程电荷序,并与石墨烯中的狄拉克费米子耦合,进而降低狄拉克电子的非相互作用费米速度^[86],让电子间库仑相互作用效应更加显著,衍生出新的关联拓扑物态^[86,87].

2 转角石墨烯体系的拓扑平带及轨道磁性

2.1 转角石墨烯体系的结构与对称性

首先介绍转角双层石墨烯莫尔体系的结构.从两层完全对齐的石墨烯出发,如果把上面一层石墨烯逆时针旋转角度 $\theta/2$,同时把下面一层石墨烯顺时针旋转角度 $\theta/2$,如图1(a)所示,这样就会形成周期为 $L_s = a/[2\sin(\theta/2)]$ 的莫尔超晶格结构,其中 a 为单层石墨烯的晶格常数.类似地,将 N 层手性堆叠的多层石墨烯放在 M 层手性堆叠的石墨烯上面,然后两者彼此旋转错开角度 θ ,就形成了转角多层石墨烯体系.图1中展示了 $(M, N) = (1, 1)$ 的转角双层石墨烯体系的结构以及 $(M, N) = (2, 2)$ 的转角双层-双层石墨烯体系的结构.而实际上转角石墨烯体系中往往存在着长周期的晶格弛豫,如莫尔尺度上可见的层间距离变化.以转角双层石墨烯为例,在 $AB(BA)$ 区域,层间距为 $d_{AB} \approx 3.35 \text{ \AA}$,而在 AA 区域,层间距变为 $d_{AA} \approx 3.6 \text{ \AA}$.这一效应对

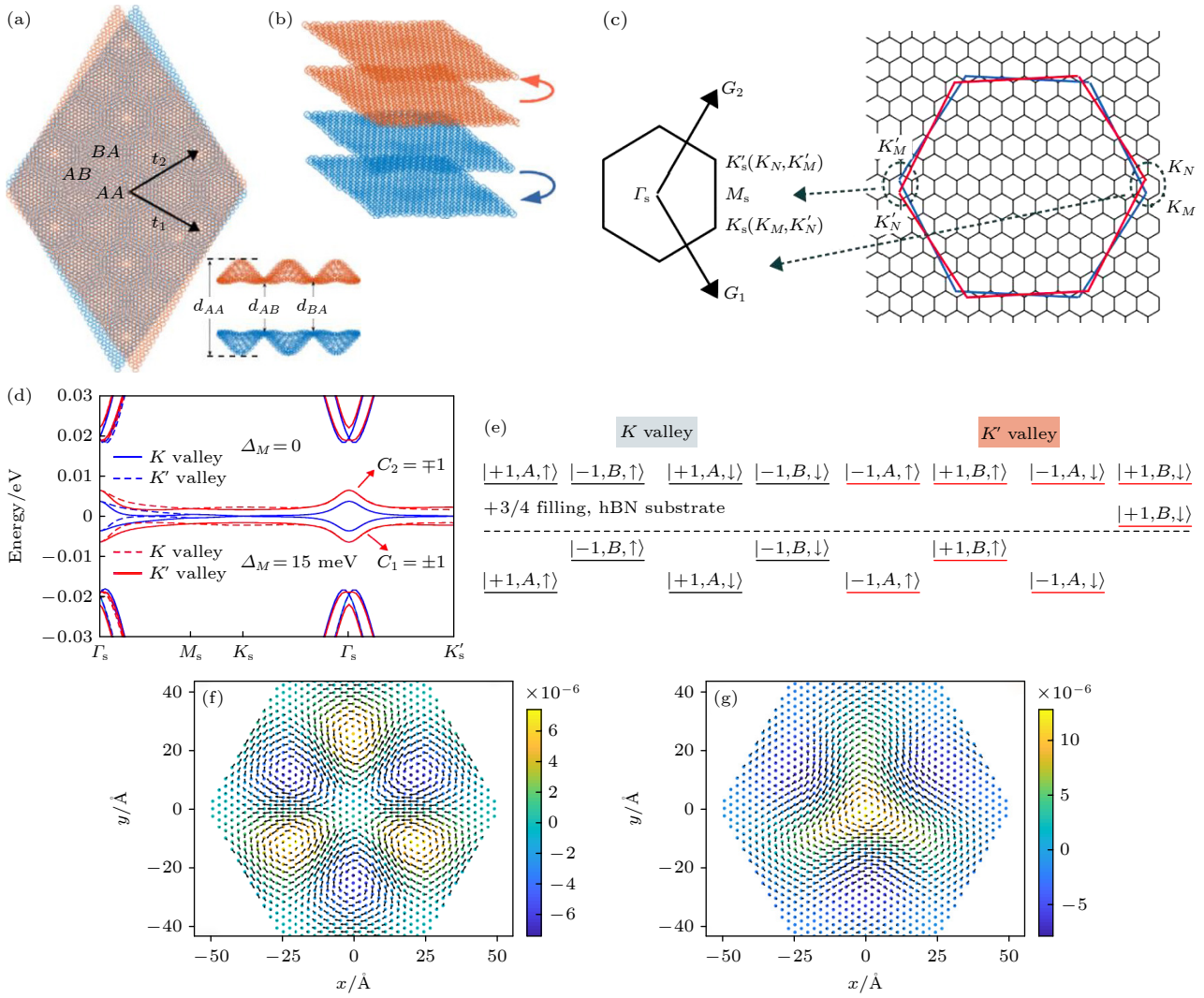


图 1 (a) 转角双层石墨烯和 (b) 转角双层-双层石墨烯体系的莫尔晶格结构的图示. (c) 转角石墨烯体系的布里渊区, 其中红色和蓝色六角分别代表底部多层石墨烯和顶部多层石墨烯的布里渊区, 而小黑六角代表着转角石墨烯超晶格的莫尔布里渊区. (d) 魔角双层石墨烯的能带. (e) 魔角双层石墨烯平带朗道能级表示的示意图^[37,45]. (f), (g) 魔角双层石墨烯 K 谷平带贡献的实空间电流密度分布^[37], 子晶格势能分别为 (f) $\Delta_M = 0$ meV 和 (g) $\Delta_M = 15$ meV

Fig. 1. Schematic illustration of the moiré lattice structures of (a) twisted bilayer graphene and (b) twisted double bilayer graphene. (c) Brillouin zone of the twisted graphene systems: the blue and red hexagons represent the atomic Brillouin zones of the bottom and top layers, and the small black hexagon denotes the mini-Brillouin zone of the moiré superlattices. (d) Energy bands of magic-angle twisted bilayer graphene. (e) Schematic illustration of the pseudo-Landau-level representation of the flat bands in magic-angle twisted bilayer graphene (TBG)^[37,45]. The real-space current density distribution contributed by flat bands in the K valley of magic-angle TBG with the staggered sublattice potential $\Delta_M = 0$ meV in (f), and $\Delta_M = 15$ meV in (g)^[37].

转角石墨烯体系的低能电子结构有着十分重要的影响. 在这样的转角石墨烯莫尔超晶格体系中, 它的莫尔倒空间里布里渊区尺度相比于原先的石墨烯单层要小很多. 在旋转操作之后, 原本的 M 层石墨烯的 K_M 点 (或 K'_M 点) 对应于莫尔布里渊区的 K_s 点 (或 K'_s 点), 而原先 N 层石墨烯的 K_N 点 (或 K'_N 点) 则是对应于莫尔布里渊区的 K'_s 点 (或 K_s 点), 如图 1(c) 所示.

在小转角的双层石墨烯超晶格结构中, 原先的

石墨烯线性狄拉克能带被折叠到很小的莫尔布里渊区里, 形成很多条能带宽很小的、纠缠在一起的子能带. 而莫尔超晶格中的莫尔势能项让这些被折叠的子能带相互耦合, 打开能隙, 形成一系列的莫尔能带. 在转角石墨烯体系中, 通常每个谷每种自旋下有两条低能狄拉克能带, 其能带宽度很小, 和其他高能能带通过有限能隙分开, 且往往具有非平庸的拓扑特征. 在转角石墨烯体系里, 由于转角很小, 原本石墨烯布里渊区里 K 谷和 K' 谷之间的距

离要远远大于莫尔布里渊区的倒晶格尺寸, 对应莫尔势能的傅里叶分量通常在 μeV 量级, 因而这两个谷附近的狄拉克态耦合可忽略不计, 即体系具备着谷 $U(1)$ 电荷守恒对称性 ($U_v(1)$ 对称性)^[13,88]. 而石墨烯由碳元素组成, 这个轻元素体系的自旋-轨道耦合效应非常微弱, 所以每个谷都有着自旋 $SU(2)$ 对称性. 总的来说, 转角石墨烯体系的低能有效哈密顿量具备着 $U(1) \times U_v(1) \times SU(2) \times SU(2)$ 对称性 (其中 $U(1)$ 则指体系总电荷守恒的对称性), 即每个谷均有 $U(2)$ 对称性, 整体有 $U(2) \times U(2)$ 对称性^[13,88].

2.2 低能有效连续模型

这里先介绍转角双层石墨烯体系的低能有效电子结构, 可以用 Bistritzer-MacDonald (BM) 连续模型^[13] 很好地描述. 该模型哈密顿量可以写为

$$\mathbf{H}_\mu^0 = \begin{pmatrix} -\hbar v_F(\mathbf{k} - \mathbf{K}_1^\mu) \cdot \boldsymbol{\sigma}^\mu & U_\mu e^{i\mu\Delta\mathbf{K} \cdot \mathbf{r}} \\ U_\mu^\dagger e^{-i\mu\Delta\mathbf{K} \cdot \mathbf{r}} & -\hbar v_F(\mathbf{k} - \mathbf{K}_1^\mu) \cdot \boldsymbol{\sigma}^\mu \end{pmatrix}, \quad (1)$$

其中, $\boldsymbol{\sigma}^\mu = [\mu\sigma_x, \sigma_y]$ 是定义在子晶格空间的泡利矩阵, $\mu = \pm 1$ 分别指的是 K' 谷和 K 谷; v_F 是单层石墨烯的狄拉克电子费米速度; $U_\mu e^{i\mu\Delta\mathbf{K} \cdot \mathbf{r}}$ 是莫尔势能, 描述着转角界面附近双层的狄拉克态之间的耦合作用^[13,89], 其具体形式为

$$U_\mu(\mathbf{r}) = \begin{pmatrix} u_0 g_\mu(\mathbf{r}) & u'_0 g_\mu(\mathbf{r} - \mu\mathbf{r}_{AB}) \\ u'_0 g_\mu(\mathbf{r} + \mu\mathbf{r}_{AB}) & u_0 g_\mu(\mathbf{r}) \end{pmatrix}, \quad (2)$$

式中, $\mathbf{r}_{AB} = (\sqrt{3}L_s/3, 0)$; $u'_0 \approx 0.098 \text{ eV}$ 以及 $u_0 \approx 0.08 \text{ eV}$ 分别是不同子晶格之间和相同子晶格之间的层间耦合系数^[89]. 莫尔超晶格的层间“波纹” (corrugation) 效应导致了 u_0 小于 u'_0 ^[45,89]. $\Delta\mathbf{K} = \mathbf{K}_2 - \mathbf{K}_1$ 是转角导致的两层石墨烯各自的狄拉克点位移间距, 而 U_μ 矩阵中的相因子 $g(\mathbf{r})$ 定义为 $g_\mu(\mathbf{r}) = \sum_{j=1}^3 e^{-i\mu\mathbf{q}_j \cdot \mathbf{r}}$, 其中 $\mathbf{q}_1 = (0, 4\pi/3L_s)$, $\mathbf{q}_2 = (-2\pi/\sqrt{3}L_s, -2\pi/3L_s)$, $\mathbf{q}_3 = (2\pi/\sqrt{3}L_s, -2\pi/3L_s)$ 是莫尔势能三个主要傅里叶分量的莫尔波矢.

现在可以将连续模型推广到转角 $(M+N)$ 层石墨烯体系, 当 $(M, N) = (1, 1)$ 则对应于转角双层石墨烯. 根据 Bistritzer-MacDonald 连续模型^[13], 转角 $(M+N)$ 层石墨烯体系的低能有效哈密顿量可以写为^[47,49-51]

$$\mathbf{H}_{\mu,\alpha,\alpha'}^0(M+N) = \begin{pmatrix} \mathbf{H}_{\mu,\alpha}^0(M) & \mathbb{U}_\mu \\ \mathbb{U}_\mu^\dagger & \mathbf{H}_{\mu,\alpha'}^0(N) \end{pmatrix}, \quad (3)$$

其中, $\mathbf{H}_{\mu,\alpha}^0(M)$ 和 $\mathbf{H}_{\mu,\alpha'}^0(N)$ 分别是手性堆垛的 M 层和 N 层石墨烯低能有效哈密顿量, $\mu = \pm$ 分别表示 K'/K 谷, 而 $\alpha, \alpha' = \pm$ 则表示堆垛手性. 这里定义 AB 或 BA 堆垛分别具有 $+$ 或 $-$ 的堆垛手性, 所以在转角 $(M+N)$ 层石墨烯体系中就有 $(\alpha, \alpha') = (\pm, \pm)$ 4 种可能情况. (3) 式中的非对角项 \mathbb{U} 是转角界面附近的层间耦合项, 与 (2) 式相同.

2.3 拓扑平带与赝朗道能级图像

转角双层或多层石墨烯体系中每个能谷往往存在着两条拓扑平带^[21,30-35,47,50,54,61,64,83,90]. 理论研究表明, 在手性近似 ($u_0 = 0$) 下仅考虑最近邻层间相互作用时, 可以得到在具备堆垛手性 (α, α') 的转角 $(M+N)$ 层石墨烯体系中 (这里 $\alpha, \alpha' = \pm$ 分别表示 M 层和 N 层石墨烯的堆垛手性), 对于一个能谷中的两条平带陈数总和满足下列关系^[47]:

$$C_{\alpha,\alpha'}^\mu = -\mu[\alpha(M-1) - \alpha'(N-1)], \quad (4)$$

其中 $\mu = \mp$ 表示 K/K' 能谷. 如在 AB - BA 堆垛的转角双层-双层石墨烯体系里, (4) 式说明其两条平带谷陈数总和为 ± 2 ; 而在 AB - AB 堆垛的转角双层-双层石墨烯体系里, 两条平带谷陈数总和为 ± 0 ^[47,50].

下面重点关注转角双层石墨烯. 除了之前讨论的 $U(1) \times U_v(1) \times SU(2) \times SU(2)$ 对称性, 转角双层石墨烯低能模型, 即 (1) 式, 还具有 D_6 晶格对称性和时间反演 (\mathcal{T}) 对称性. 其中 C_{2z} , \mathcal{T} , C_{3z} 和 C_{2x} 对称性保证了莫尔平带在莫尔布里渊区中 K_s 点和 K'_s 点的简并. 此时, 如图 1(d) 所示, 每个谷每种自旋下的两条平带具有受 $C_{2z}\mathcal{T}$ 对称性保护的非平庸拓扑性, 并具有奇数次缠绕的威尔逊圈的特征^[41,43-45,91]. 如果把魔角双层石墨烯放在氮化硼衬底上, 衬底会赋予转角石墨烯体系一个交错的子晶格势能, 也就是狄拉克质量项 $\Delta_M \approx 15 \text{ meV}$. 此时 C_{2z} 对称性被破坏, 两条平带之间在 K_s 点和 K'_s 点打开了拓扑非平庸的能隙, 让转角双层石墨烯的两条低能莫尔能带具有非零的谷陈数, 为 ± 1 .

在魔角双层石墨烯体系中, 可以注意到 K_s 点和 K'_s 点处的波函数主要局域在 AA 区域, 因此可以选取 AA 区域的中心为原点, 将莫尔势能按 r/L_s 作级数展开, 并且对连续模型里哈密顿量基底波函数作特定的么正变换^[45], 则 μ 谷的哈密顿量就写成

$$\mathbf{H}^\mu(\mathbf{k}) = \begin{pmatrix} -\hbar v_F \left(\mathbf{k} - \frac{e}{\hbar} \mathbf{A}^\mu \right) \cdot \boldsymbol{\sigma}^\mu & -3iu_0 \\ 3iu_0 & -\hbar v_F \left(\mathbf{k} + \frac{e}{\hbar} \mathbf{A}^\mu \right) \cdot \boldsymbol{\sigma}^\mu \end{pmatrix}, \quad (5)$$

其中 $\mathbf{A}^\mu = -2\mu\pi u'_0 / (L_s e v_F) [y, -x]$ 是由莫尔势能产生的有效磁矢量势, 会产生均匀的赝磁场 $|\mathbf{B}_s| = |\nabla \times \mathbf{A}| = 4\pi u'_0 / (e L_s v_F)$. 如果只单独看这个哈密顿量的对角块, 则等价于两类狄拉克费米子与相反方向的赝磁场耦合的哈密顿量, 其零朗道能级具有完全的子晶格极化, 并且在相反方向磁场下子晶格极化也是相反的. 这样, 两个零朗道能级有相反的子晶格极化和相反的手性, 嵌入到周期性的莫尔超晶格中便形成了具有相反陈数 (± 1) 的拓扑平带. 增加 u'_0 项, 会使得赝朗道能级的间隙增加. 而非对角项 $3iu_0$ 在子晶格空间的角度上看是对角的, 所以在子晶格完全极化的零朗道能级子空间里是消失的^[45]. 但是, 更高的赝朗道能级并没有子晶格极性. 因此, 在包含更多赝朗道能级的空间里, 非对角项 $3iu_0$ 把手性相反的高阶赝朗道能级耦合到一起, 拓扑性质消失. 实际上转角石墨烯的原子结构调制作用使得 u'_0 项大于 u_0 项, 这有助于形成平带和其他能带之间的能隙. 上述的赝朗道能级图像引入了新的特征长度, 即 AA 区域的赝磁场引入的磁长度 $l_B = \sqrt{L_s \hbar v_F / (4\pi u'_0)}$. 而包含一个赝量子磁通所需要的面积则是 $S_0 = \pi l_B^2$. 当每个莫尔超晶胞的 AA 区域恰巧包含整数个赝量子磁通时, 在 AA 区域中的电子可以在赝磁场的驱动下做完整的回旋运动, 而不会与相邻元胞中的电子耦合. 因此, 这时 AA 区域的零朗道能级即是该体系本征态的一个很好的近似, 对应的在莫尔布里渊区里就会产生在 K_s, K'_s 点附近费米速度趋于零的平带. 上述论证可以得到一个“魔角”的经验公式: $\Omega_{AA} = n\pi l_B^2$ ^[92], 这里 Ω_{AA} 是每个莫尔超晶胞中 AA 区域的面积, 需要一个经验参数来确定. 通过该经验公式得到的一系列魔角与数值计算得到的结果完美符合^[92].

基于赝朗道能级图景, 魔角双层石墨烯平带部分填充下的基态则有了简明的物理解释. 考虑谷自由度和自旋自由度, 在“手性极限”, 即 $u_0 = 0, u'_0 \neq 0$, 当转角为严格的魔角时, 魔角双层石墨烯具有 8 条简并的、带宽严格为零的平带^[44]. 而上述的论证表

明这些严格平带具有非平庸的拓扑性质, 源于具有相反陈数、相反自旋和相反子晶格极化的零朗道能级^[45]. 如果把魔角双层石墨烯放在氮化硼衬底上并且与衬底对齐, 让 AA 区域 A, B 子晶格的碳原子分别与硼原子、氮原子对齐, 那么衬底会赋予转角双层石墨烯体系一个交错的子晶格势能, 从而在原本简并的平带间打开能隙, 如图 1(d) 所示, 让价带和导带具有非零的谷陈数 ± 1 . 当平带填充数 $\nu = 3$ 时^①, 即 8 条平带填充了 7 条, 库仑作用会在占据态和非占据态之间打开能隙, 如图 1(e) 所示. 由于每一条平带都具有 ± 1 的陈数, 该能隙一定具有非零的陈数 (± 1), 因此形成自发破缺时间反演对称性的陈绝缘体态. 这样基于赝朗道能级的简单图像可以很好地解释当填充数为 3 时实验上观测到的陈数为 1 的量子反常霍尔效应^[21,30].

2.4 转角石墨烯体系中的轨道磁性态

第 2.3 节提及魔角石墨烯体系中的平带可以近似地用零朗道能级描述, 而处于朗道能级的电子会作回旋运动而形成电流回路, 所以魔角双层石墨烯中每个谷两个手性相反的零朗道能级会在实空间贡献两套方向相反的电流回路. 由于体系具有三种旋转对称性, 每个谷的平带电子在莫尔超胞中会形成六个电流回路, 其中三个逆时针旋转, 另外三个是顺时针旋转的, 从而在莫尔尺度上形成了交错的轨道磁通量, 形成一种“莫尔轨道反铁磁序”, 如图 1(f) 所示^[82,93]. 而轨道-时间反演操作 \mathcal{T} 使得两个谷的电流密度互相抵消, 使得在非相互作用基态下总电流密度为零. 而当魔角双层石墨烯放在氮化硼衬底上时, 由于交错型子晶格势的存在, 每个谷的 $C_{2z}\mathcal{T}$ 对称性不复存在, 从而每个谷允许有非零的轨道磁矩. 在填充数 $\nu = 3$ 时, 自发对称破缺形成的谷极化态呈现出轨道铁磁态, 拥有着非零的量子反常霍尔电导率, 在莫尔晶胞里形成了手性的电流回路, 如图 1(g) 所示. 由于此时电流回路的半径达到莫尔尺度的数量级, 因此会贡献巨大的轨道角动量和轨道磁矩^[47,94,95]. 非零的谷陈数和巨大的轨道磁矩也往往存在于转角多层石墨烯体系中. 以转角双层-双层石墨烯体系为例, 在 AB-AB 堆垛的体系中, 虽然 C_{2z} 对称性不存在, 但体系仍保持着 C_{2x} 对称性, 这会使得每个谷的谷陈数和轨

① 这里填充数 $-4 \leq \nu \leq 4$ 表示 8 条平带的填充数为 $4 + \nu$.

道磁矩为零. 如果施加垂直方向的位移电场, 就会破坏 C_{2x} 对称性, 引发出非零的谷陈数和轨道磁矩. 而在 AB - BA 堆垛的转角双层-双层石墨烯体系中, 体系具备的 C_{2y} 对称性使得两个谷的总轨道磁矩为零, 但并不妨碍单个谷拥有非零的轨道磁性和谷陈数. 总的来说, 转角多层石墨烯体系因为 C_{2z} 对称性的破缺, 往往具有非零的贝里曲率, 进而每个谷的平带电子通常具有非零的轨道磁矩. 轨道磁矩可以认为来源于莫尔尺度上的手性电流回路. 由于手性电流的特征半径与莫尔尺度相当, 处于手性轨道电流上的电子有着巨大的轨道角动量, 所以会贡献巨大的轨道磁矩, 可达到每个莫尔原胞 $10\mu_B$ 的量级^[47]. 这些手性电流进而可以通过在电子-电子相互作用驱动下自发破缺时间反演对称性的机制产生轨道铁磁态. 这些手性电流亦可以进一步与面内的外加电场相互耦合, 实现轨道电磁耦合效应^[96-99].

3 普适转角多层石墨烯和交错转角多层石墨烯能带结构的普适手性分解规则

前面介绍了手性堆垛 (ABC 堆垛) 的转角多层石墨烯体系的连续模型, 可由此得出各种转角石墨烯体系的非相互作用能带. 面对各种各样的转角多层石墨烯体系 (TMG), 总结出关于这些转角多层石墨烯体系的低能能带色散特征普遍规律是必要的. 本节主要讨论普适转角多层石墨烯体系的能带色散特征和相关普适手性分解规则^[55,80].

首先考虑普适转角多层石墨烯体系. 这类体系由两组多层石墨烯构成: M 层石墨烯和 N 层石墨烯. 在每个层组内部, 多层石墨烯的堆垛方式可以是 ABA 堆垛、 ABC 堆垛或者二者的混合. 如第 2 节所述, 这样的 $M+N$ 层石墨烯体系每一个能谷有两条 (一套) 平带; 增加非转角层的堆垛时, 会在莫尔 K (K') 点增加一系列无能隙费米激发, 这些无能隙能带的数量和色散关系与非转角层的堆垛方式密切相关^[100].

想要理解转角多层石墨烯体系的低能单电子能带特征与非转角层堆垛方式的关系, 可以首先考虑手性近似下无转角多层石墨烯的低能电子结构. 对于 N 层未转角任意堆垛石墨烯, 根据堆垛手性将其分为 S_N 个片段, 在每个片段内保持堆垛手性不变. 包含 J_i 层手性堆垛石墨烯的第 i 个片段贡献

出一对色散为 $E(\mathbf{k}) \sim \mathbf{k}^{J_i}$ 无能隙的能带. 根据这个分解, N 层未转角任意堆垛石墨烯的哈密顿量可以写成 S_N 个手性堆垛片段的直和^[100]: $\mathbf{H}_N \approx \mathbf{H}_{J_1} \oplus \mathbf{H}_{J_2} \cdots \oplus \mathbf{H}_{J_{S_N}}$. 接下来考虑转角多层石墨烯体系, 莫尔势能会将包含旋转层的两个手性堆垛的片段相耦合, 形成一套平带, 这些平带会和其余未耦合片段产生的无能隙能带共存.

基于上述图像, 可以提出一套普适的手性分解规则. 根据这个规则, 可以无需计算, 只通过堆垛方式就能得知任意转角多层石墨烯体系的低能电子结构特征^[55]. 首先, 根据堆垛手性, 将两组石墨烯分别分解成 S_M 和 S_N 个片段, 每个片段内部都是手性堆垛, 并使得包含转角层的片段尽可能长. 在转角界面的两个厚度为 $J_{M,M}$ 和 $J_{N,1}$ 的手性堆垛片段通过莫尔势能的耦合形成一套平带, 而其余厚度为 $J_{N,i}$ ($i=2, \dots, N$) 和 $J_{M,i}$ ($i=1, \dots, M-1$) 的手性堆垛片段则在莫尔布里渊区中的 K_s 和 K'_s 点形成若干对色散为 $E(\mathbf{k}) \sim \mathbf{k}^{J_i}$ 的无能隙能带. 现在可以通过一个简化的 $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ 模型来验证手性分解规则: 在转角为严格魔角时且在手性近似下, 体系的连续模型哈密顿量由一个魔角双层石墨烯哈密顿量和一些狄拉克费米子哈密顿量组成. 对于魔角双层石墨烯的波函数, 取手性近似下的平带严格解^[44]; 对于非转角层, 取单层石墨烯的 $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ 哈密顿量, 并在莫尔 K_s (K'_s) 点附近进行微扰展开. 通过求解简化 $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ 模型的能谱, 可以得到体系在莫尔 K (K') 点附近的能带特征, 并验证手性分解规则的正确性. 需要说明的是, 手性分解规则和简化 $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ 模型是在手性近似下得出的, 在进一步考虑转角层同子晶格跃迁和非转角层次近邻跃迁的贡献时, 原本的严格平带会获得一定的色散, 无能隙能带 $E \sim \mathbf{k}^J$ 的色散关系也会有所偏离, 但是能带的总体特征不会发生改变.

除了转角双层石墨烯和转角多层石墨烯之外, 研究人员还将注意力放在了双转角的莫尔石墨烯体系上. 例如, 理论计算表明在交错转角三层石墨烯中存在平带和狄拉克锥共存的新颖电子结构^[52], 且被角分辨光电子能谱实验直接观测到^[72]. 进一步地, 实验在交错转角三层石墨烯中观测到了超出泡利极限的非常规超导态^[73-76] 等新奇现象. 受启发于这些新颖的实验现象, 可以进一步把前面的讨论推广到交错转角多层石墨烯体系 (ATMG)^[80]. ATMG 体系由三组多层石墨烯 (M - L - N) 构成, M (L)

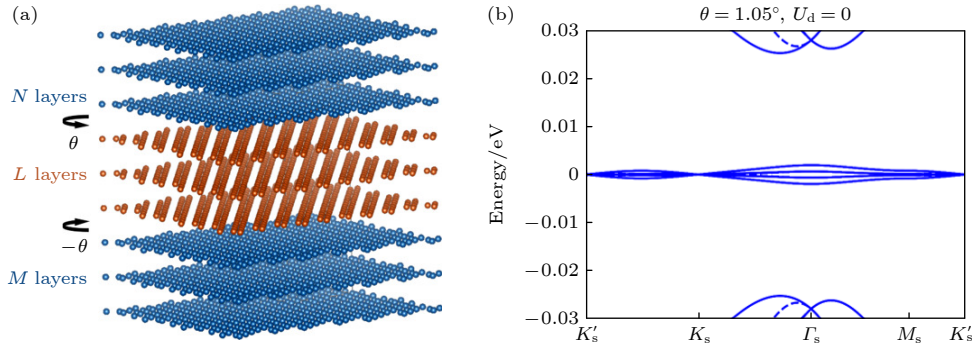


图 2 (a) 交错转角多层石墨烯体系的晶格结构示意图; (b) 手性近似下 A - ABA - A 体系的能带^[56], 存在两套平带, 其中实线为 K 能谷的能带, 虚线为 K' 能谷的能带

Fig. 2. (a) Schematic illustration of the lattice structure of alternating twist multilayer graphene; (b) band structures of A - ABA - A system which include two sets of flat bands^[56]. The solid and dashed blue lines denote the bands from the K and K' valleys, respectively.

层石墨烯堆叠在 $L(N)$ 层石墨烯上, 二者之间存在一个小的转角 $\theta(-\theta)$, 如图 2(a) 所示. 与 TMG 体系不同, ATMG 体系引入了第二个转角, 进而引入了新的自由度, 在某些堆叠下还会出现两套平带, 如图 2(b) 所示. 与前文的分解手法类似, 将手性分解规则推广到 ATMG 体系: 将三组石墨烯按照堆叠手性分解成 S_M , S_L 和 S_N 个片段, 并使包含转角层的片段尽可能长. 当中间层组只有一层石墨烯时, 三个片段通过交错转角耦合在一起, 贡献一套平带和一对无能隙的能带. 当中间层组有多于一层的石墨烯时, 如果其可以被分解为不少于两个片段, 则不存在交错转角层的耦合, 体系每个谷和自旋自由度会有两对 (四条) 平带; 如果中间层组只能形成一个片段, 则交错转角层通过中间层组的片段耦合, 形成一套平带. 类似地, 其余每个未耦合片段形成一对色散为 $E(\mathbf{k}) \sim \mathbf{k}^J$ 的无能隙能带. ATMG 体系的手性分解规则同样可以被简化 $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ 模型验证^[80].

表 1 中列出了一些 TMG 和 ATMG 体系的例子^[55,80], 并应用手性分解规则描述其低能能带特征. 如 A - A - $ABAC$ 石墨烯体系可以被分成两部分: A - A - AB 为交错转角部分, 贡献一套平带和一个狄拉克锥; 而 AB 为非转角部分, 贡献一对无能隙的二次型能带. 手性分解规则指出, 对于中间层组包含多于一层石墨烯且具有镜面对称的 ATMG 体系, 必然存在两套平带 (即每个谷和自旋自由度存在四条平带). 不寻常的双平带使得这类体系对于相互作用非常敏感. 同时, 与之共存的无能隙激发 (如狄拉克锥) 会带来与转角双层石墨烯体系完全不同

的关联效应^[80,101]. 特别地, 对于最简单的具有两套平带的交错转角多层石墨烯体系, 在某些整数填充时, 会产生同时自发破缺镜面对称性和时间反演对称性的基态. 这种新奇物态同时具有面外的电极化以及轨道磁矩, 是一种由库仑关联效应驱动的多铁相. 另外, 由于在这种多铁相中电极化序参量和轨道磁矩序参量的紧密缠绕, 该体系存在着可通过垂直电场调控轨道磁矩、并通过磁场调控电极化的轨道磁电耦合现象^[80].

表 1 手性分解规则的例子. 在 $K_\mu(K'_\mu)$ 点有 m 条色散为 $E(\mathbf{k}) \sim \mathbf{k}^n$ 的能带, 记为 (m, n)

Table 1. Typical cases for generic partition rules. (m, n) represents that there are m energy bands with $E(\mathbf{k}) \sim \mathbf{k}^n$ dispersion at the $K_\mu(K'_\mu)$ point.

手性分解	平带数量	K 点能带	K' 点能带
A - AB + A	2	(1, 1)	0
A - AB + AB	2	(1, 2)	0
A - A - A	2	(1, 1)	0
A - A - AB + AC	2	(1, 1), (1, 2)	0
AB - A - BA	2	(1, 1)	0
A - AB + A - A	4	0	0
A - ABC - A	2	/	/
A - AB + ABC - A	4	0	0

4 拓扑平带所对应的量子化压电响应

前文讨论了各种各样转角石墨烯体系的拓扑特征, 确实, 一直以来尽管人们能够在理论上通过威尔逊圈^[41,45,102]和谷陈数^[47,103,104]等方式描述转角石墨烯体系中平带的拓扑性质, 但是一直缺乏对

其拓扑性质的直接实验观测手段. 理论上已经提出一种对其拓扑性质的可行性实验观测方案^[81], 即通过测量压电响应系数来判断转角石墨烯体系中能带的具体谷陈数. 首先, 现代电极化理论^[105,106]定义的由价电子贡献的压电张量表达式与陈数的定义十分类似. 而在只考虑应变对电子最邻近跃迁的影响时, 可以证明应变等效为矢量势 \mathbf{A} ^[107]. 因此, 应变张量与晶格动量 \mathbf{k} 是线性耦合的, 由此, 对于莫尔石墨烯体系体系, Peng 和 Liu^[81] 得到

$$\gamma_{ijk} = 2(-1)^i \frac{e}{2\pi} (\xi_{ijk}^- C_- + \xi_{ijk}^+ C_+), \quad (6)$$

其中 C_{\pm} 为 K_{\pm} 谷的能带 (原则上可以是任意被能隙隔开的孤立能带, 不仅适用于平带) 的陈数, 因子 2 来自自旋简并度, $(-1)^i = \pm 1$ 对应着 $i = x, y$, 而 ξ_{ijk}^{η} 取决于具体的材料性质. 此前的一项研究^[108]指出: 当能带中存在“谷”的结构时, 有时间反演对称性的拓扑非平庸二维体系在发生拓扑相变的前后, 其压电响应会发生跃变. 而对于双层转角石墨烯以及其他莫尔石墨烯体系而言, 前文中的论述对于不管是否接近拓扑相变的状态都是适用的, 压电响应应该总是呈现为成正比于陈数的准平台. 这一性质是莫尔石墨烯体系中拓扑能带所特有的性质, 而这种拓扑性是由其谷 $U_v(1)$ 对称性所保护的.

在计算中, 为了打开平带与平带之间的能隙, 可以让转角石墨烯体系与六角氮化硼 (hBN) 衬底对齐^[103,104,109,110], 这样就破坏了体系的 C_{2z} 对称性, 双层转角石墨烯原本具有的 D_6 对称性退化为 D_3

对称性. 这一对称性要求: $\gamma_{xxx} = \gamma_{xyy} = \gamma_{yxy} = 0$, $\gamma_{xxy} = \gamma_{yxx} = -\gamma_{yyy}$, 即该模型的压电张量只有一个自由分量. 后文选取 γ_{yxx} 分量来展示结果.

对于石墨烯的 K 谷而言, 应变引起的等效矢量势在 K 谷和 K' 谷中符号是相反的, 保持着体系的时间反演对称性. 由此可得每个自旋和谷自由度以及每谷陈数对压电张量的贡献为^[81] $\gamma_{yxx}^0 = \frac{e}{2\pi} \frac{\sqrt{3}\beta}{2a} = -281.8 \text{ pC/m}$. 其中包含的参数 a 为石墨烯的晶格常数, β 为碳原子 $2p_z$ 轨道间跃迁强度的 Slater-Koster 模型中的衰减率 3.14 ^[111], 都只与单层石墨烯的性质相关. 所以, 这一结果对于所有转角石墨烯体系都是普适的.

图 3(a) 展示了转角为 1.05° 、与 hBN 对齐的转角双层石墨烯的价带平带与导带平带沿 y 方向的电极化关于应变 u_{xx} 的变化关系^[81]. 二者的谷陈数分别为 ± 1 , 因此它们的电极化响应也恰好相反. 图 3(b) 中则展示了压电张量的 γ_{yxx} 分量在不同转角下的值. 可以看到, 在当前模型参数下, 这一模型在转角 1° 附近发生了拓扑相变, 价带、导带平带的谷陈数从 ± 1 变为 0, 而压电张量也相应地近似于零. 虽然由于紧束缚模型包含了次邻近以及更远距离的轨道间跃迁的效应, 但是计算得到的压电响应张量依旧表现出良好的量子化特性. 值得注意的是, 由于平带的拓扑性质是由 $U_v(1)$ 对称性所保护的, 而转角石墨烯样品中常有的莫尔尺度上不均匀应变以及层间异质应变^[17,112] 不会破坏这一对称性, 因此压电响应的量子化特性得以保持. 但是由

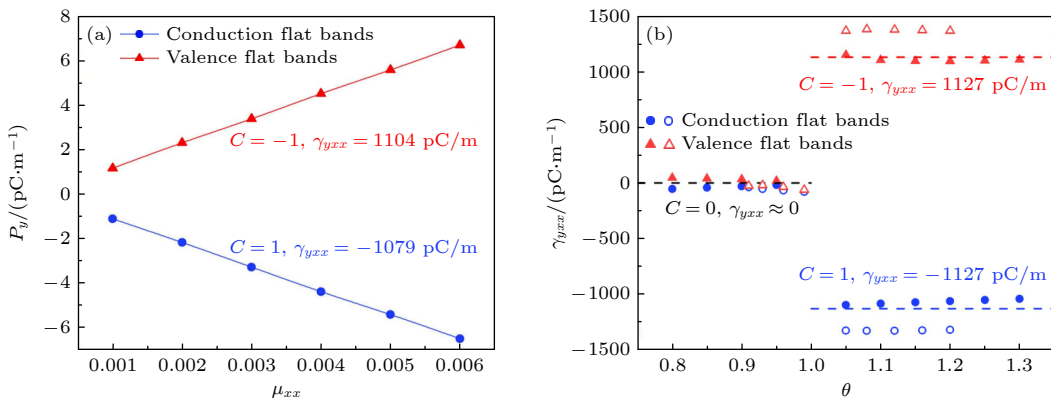


图 3 (a) 两层都与 hBN 对齐的魔角双层石墨烯 y 方向电极化关于应变分量 u_{xx} 的变化^[81]; (b) 由价带平带 (红色三角) 和导带平带 (蓝色圆点) 贡献的压电响应 γ_{yxx} 关于转角 θ 的变化^[81], 其中实心点代表连续模型的结果, 空心点代表紧束缚模型的结果, 而水平虚线代表理想的量子化值

Fig. 3. (a) Plots of polarization along y direction vs. strain u_{xx} for hBN-aligned magic-angle TBG^[81]; (b) twist-angle (θ) dependence of γ_{yxx} contributed by the valence (red triangles) and conduction (blue circles) flat bands, where the solid ones are the results from continuum model and the hollow ones are the results from tight-binding model^[81]. The horizontal-dashed lines in panel (b) mark the ideal quantized values.

电子相互作用产生的关联态有时会破坏 $U_v(1)$ 对称性, 自发形成谷间相干态^[113–118], 此时压电响应的量子化就不再有效.

最后, 讨论一些多层转角石墨烯体系的拓扑压电响应. 如果在 AB 堆叠的层间耦合中只考虑最邻近项, 那么前文中的论述全都适用. AB 堆叠的层间耦合中与晶格动量 \mathbf{k} 相关的次邻近项与应变耦合的方式是与单层石墨烯类似, 同样等效于一个矢量势, 但相差一个因子, 这也使得压电响应的严格量子化不再成立. 但是正如图4中所示, 计算结果表明它基本不影响电极化响应的量子化特征. 总之, 转角石墨烯体系中具有非零谷陈数的拓扑平带可以带来接近量子化的拓扑压电响应, 可以用来定量地测量莫尔石墨烯中平带的谷陈数^[81].

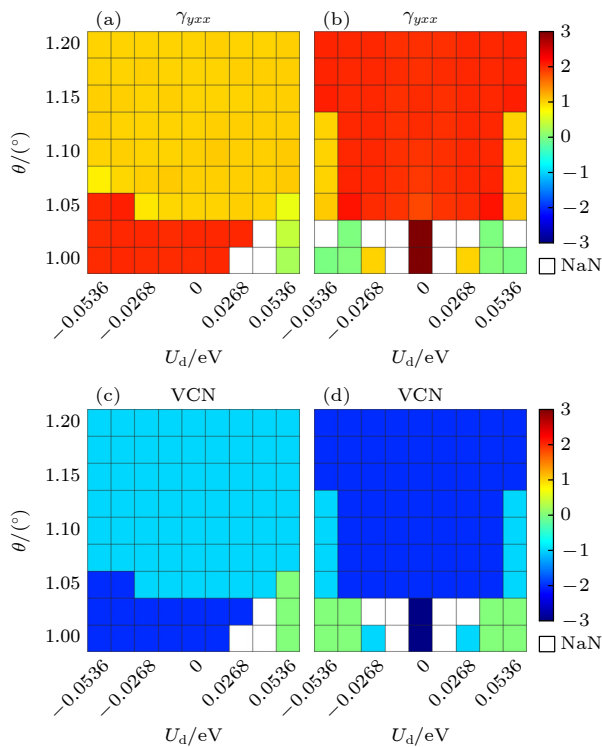


图4 A - AB 堆叠转角单层-双层石墨烯的(a)压电响应和(c)谷陈数, 以及 AB - BA 堆叠双层-双层转角石墨烯的(b)压电响应和(d)谷陈数^[81]. 这里 U_d 为位移电场. 在图(a)和(b)中, γ_{yx} 的值显示为 $|4\gamma_{yx}^0| = 1127 \text{ pC/m}$ 的倍数. 空白格子代表过于接近拓扑相变而无法准确计算压电响应和陈数的区域

Fig. 4. (a), (b) Piezoelectric tensor and (c), (d) valley Chern numbers of all flat bands in (a), (c) twisted monolayer-bilayer graphene and (b), (d) twisted double bilayer systems^[81]. U_d is displacement field here. In panels (a) and (b), the values of γ_{yx} are shown in the units of $|4\gamma_{yx}^0| = 1127 \text{ pC/m}$. The blank patches indicate points, which are too close to gap closures.

5 魔角双层石墨烯的关联物态以及非线性光学响应

5.1 魔角双层石墨烯的关联绝缘态与单粒子激发谱的级联转变

在魔角双层石墨烯中平带的能带宽度 W 非常小($W \sim 5\text{--}10 \text{ meV}$), 库仑相互作用 $U \sim 25 \text{ meV} \gg W$, 让体系进入强耦合的范畴^[119]. 考虑谷和自旋自由度, 魔角双层石墨烯总共有8条平带, 在部分整数填充情况下(即填充数 $\nu = -3, -2, -1, 0, 1, 2, 3$), 库仑作用驱动着体系进入关联绝缘态^[14,16–24]. 第2节用赝朗道能级图景解释了在氮化硼对齐的魔角石墨烯体系中的量子反常霍尔态. 而在魔角石墨烯体系中观测到的关联绝缘态则复杂得多, 低能有效电子结构的细节和波函数的拓扑性质往往对相互作用基态有着重要的影响. 因此, 研究人员往往结合数值计算来研究魔角双层石墨烯体系中的相互作用基态, 包括基于实空间有效晶格模型的数值计算^[89,119–129]、范霍夫奇点附近“热点”模型的弱耦合分析^[130,131]、基于连续模型的Hartree-Fock计算^[113,114,117,118,132–134]、密度矩阵重整化群和张量网络计算^[135–138]、动量空间的量子蒙特卡罗计算^[139–141]以及严格对角化计算^[141–143]等. 平带的非平庸拓扑使得平带的对称保护的局域化瓦尼尔函数难以构建, 这给针对平带的基于局域化轨道实空间描述(例如Hubbard模型)带来困难. 而非平庸的能带拓扑性让整数填充下魔角双层石墨烯的电子关联问题与量子霍尔铁磁性具有相似性, 因此在平带的部分整数填充下, 交换库仑相互作用引起8条准简并平带的谷、自旋、陈数劈裂, 形成了各种各样的自发对称性破缺相互作用基态^[93,104,113–116,119,127–129,132,133,135–137,139,140,142–145].

特别值得指出的是, Kang和Vafek^[119]以平带瓦尼尔函数基底构建了具有近似 $SU(4)$ 对称性的相互作用哈密顿量, 并得到在填充数为2时该相互作用哈密顿量的基态为谷-自旋空间中的广义铁磁态. Bultinck等^[113]和Bernevig等^[116]指出, 在手性极限下(即相同子晶格之间的层间耦合系数 $u_0 = 0$), 由于BM连续模型的 $U(2) \times U(2)$ 对称性、手性极限下的手性对称性以及额外的粒子-空穴对称性^[45,113,116,146], 投影到严格平带波函数的相互作用哈密顿量具有 $U(4) \times U(4)$ 对称性. 当偏离手性极

限后 ($u_0 \neq 0$), 投影到平带波函数的相互作用哈密顿量则具有 $U(4)$ 对称性, 并在进一步考虑动能后被降低到 $U(2) \times U(2)$ [113,116]. Bultinck 等 [113] 进一步指出在电中性点的相互作用基态为一种新奇的“Kramers 谷间相干态”. 这种量子态自发破缺了谷电荷守恒, 也自发破缺时间反演对称性, 在实空间会有原子尺度上的电流回路, 但是却具有一种“Kramers”时间反演对称性 (由 $\tau_z \mathcal{T}$ 表示, τ_z 为谷空间定义的泡利矩阵, 即谷电荷守恒对称性的产生子, \mathcal{T} 为时间反演对称性). Lian 等 [115] 进一步指出, 在手性极限和严格平带极限下, 体系在部分整

数填充下的严格基态波函数是在谷-自旋-陈数空间内定义的高度简并的 Slater 行列式波函数, 而偏离手性极限和有限动能会解除 $U(4) \times U(4)$ 对称性带来的高简并度, 让体系选择特定的 Slater 行列式波函数, 并在奇数填充时具有非零陈数. 近期, Shi 和 Dai [145] 以及 Song 和 Bernevig [147] 提出了魔角双层石墨烯的拓扑重费米子模型, 为理解该体系的强关联和拓扑物理提供了新的视角.

具体而言, 考虑这样的总哈密顿量 $H = H_0 + H_c$, 其中 H_0 是非相互作用哈密顿量, 而 H_c 则是起主导作用的长程电子-电子库仑相互作用, 即

$$H_c = \frac{1}{2N_s} \sum_{\mu, \mu', \alpha, \alpha', \sigma, \sigma'} \sum_{\mathbf{k}, \mathbf{k}' \neq \mathbf{q}} V(\mathbf{q}) \hat{c}_{\mathbf{k}+\mathbf{q}, \alpha\sigma\mu}^\dagger \hat{c}_{\mathbf{k}'-\mathbf{q}, \alpha'\sigma'\mu'}^\dagger \hat{c}_{\mathbf{k}', \alpha'\sigma'\mu'} \hat{c}_{\mathbf{k}, \alpha\sigma\mu}, \quad (7)$$

其中, N_s 是体系中莫尔晶胞的总数, σ, α, μ 分别指自旋、层/子晶格和谷指标. $\hat{c}_{\mathbf{k}, \alpha\sigma\mu}^\dagger$ 和 $\hat{c}_{\mathbf{k}, \alpha\sigma\mu}$ 分别代表波矢为 \mathbf{k} 的狄拉克费米子产生和湮灭算符, 而 $V(\mathbf{q})$ 则代表电子间的库仑作用在波矢 \mathbf{q} 的傅里叶分量. 采用非约束 Hartree-Fock 近似, 库仑相互作用被投射到平带子空间后自洽求解相互作用哈密顿量. 但高能电子与平带电子的库仑相互作用会给

平带电子带来库仑势能 [116,148], 其交换部分会显著增强平带色散, 并引起单粒子能谱的粒子-空穴非对称性, 如图 5(b) 所示. 此外, 之前的多数工作中在考虑相互作用基态时, 使用了不随波矢 \mathbf{q} 变化的屏蔽介电常数. 但除了来自于绝缘衬底的屏蔽效应外, 魔角双层石墨烯体系的平带电子之间的库仑相互作用会进一步被高能子空间能带的虚拟粒子-空

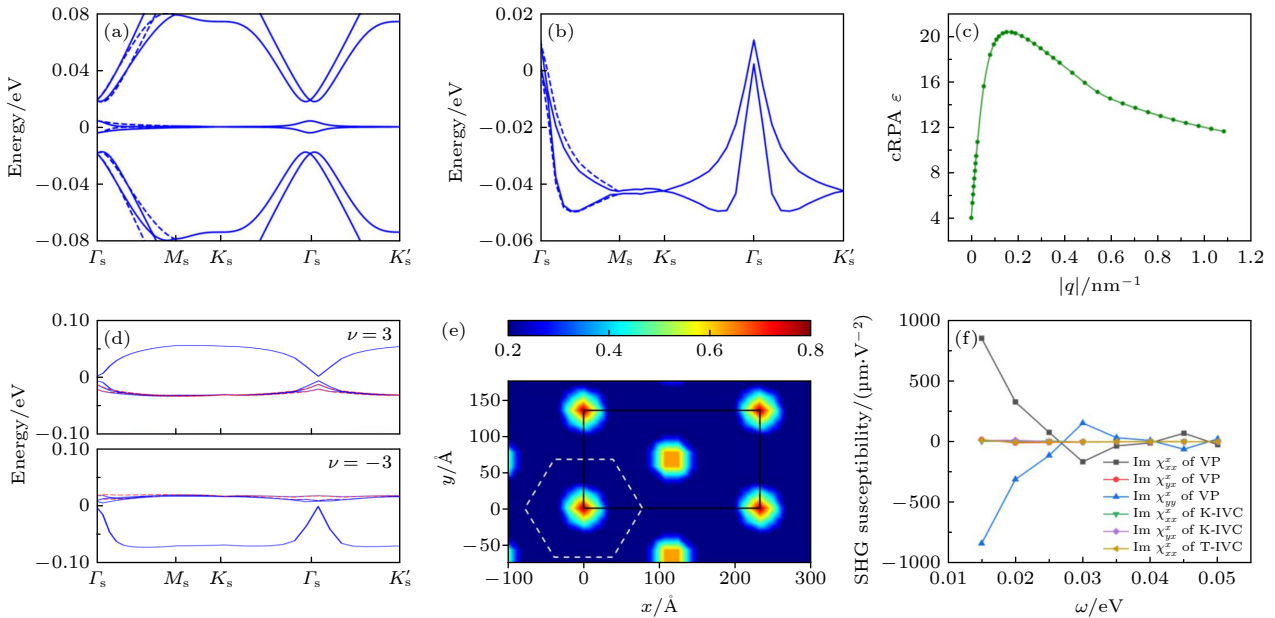


图 5 (a) 魔角双层石墨烯的非相互作用能带; (b) 包含高能子空间库仑势能效应的平带色散 [82]; (c) 考虑库仑屏蔽效应后介电常数随波矢的变化 [82]; (d) 上图为 $\nu = 3$ 填充处的相互作用单粒子能谱, 下图为 $\nu = -3$ 填充处的相互作用单粒子能谱 [82]; (e) $\nu = 1$ 时密度波态的实空间电荷分布 [82]; (f) 不同自发对称性破缺态下的非线性光学响应 [82]

Fig. 5. (a) Non-interacting energy bands of magic-angle twisted bilayer graphene; (b) flat-band dispersions including remote-band Hartree-Fock potentials [82]; (c) wave vector dependence of the effective dielectric constant [82]; (d) single-particle excitation spectra at $\nu = 3$ filling (upper panel) and at $\nu = -3$ filling (lower panel) [82]; (e) real-space distributions of charge density at $\nu = 1$ filling [82]; (f) nonlinear optical response of different symmetry-breaking states [82].

穴激发对所屏蔽, 这种来自于高能电子的屏蔽效应可以通过约束无规相近似 (cRPA) 来处理^[82,149]. 这样算出的有效屏蔽常数随着波矢 q 的变化如图 5(c) 所示. 在保持莫尔晶格平移对称性的前提下, 利用上述 Hartree-Fock+cRPA 计算可以得出在整数填充下的相互作用单粒子激发谱 (图 5(d)), 并发现相对于电中性点 $\pm\nu$ 填充下的单粒子能谱有整体的粒子空穴对称性: 在整数填充 ($\nu = 1, 2, 3$) 时, 远离 (靠近) 电中性点的电荷激发具有更小 (更大) 的有效质量^[82,118,148]; 而在 $-\nu$ 时则行为完全相反, 如图 5(d) 所示, 其中上图 (下图) 为 $\nu = 3$ ($\nu = -3$) 的单粒子激发能谱. Kang 等^[148]指出, 单粒子激发谱的这种性质可以很好地解释该魔角双层石墨烯在扫描隧道谱和逆压缩率测量中所展现出的一系列级联转变现象^[150,151].

而近期实验在 $\nu = 1, 3$ 填充处观测到零陈数的绝缘态^[16,40], 这一实验现象跟之前保持莫尔晶胞平移对称性的理论计算陈数结果^[114,115,132] 是不一致的. Zhang 等^[82] 的计算表明 $\nu = 1, 3$ 填充处的零陈数的绝缘态是自发破缺莫尔平移对称性的密度波态. 在这个填充下, 体系在电子间相互作用驱动下自发地扩胞两倍, 并处于陈数为零的自旋-谷极化态, 拥有 $C_{2z}\mathcal{T}$ 对称性^[82]. 图 5(e) 中展示了在 $\nu = 3$ 时这个密度波态的实空间电荷密度分布, 呈现出明显的平移对称性破坏和 C_{3z} 旋转对称性的破坏^[82]. Kang 和 Vafeek^[135] 以及 Xie 等^[152] 也在 $\nu = -3$ 填充处发现了两倍超胞的具有 $C_{2z}\mathcal{T}$ 对称性的零陈数态.

实验上还在分数填充下的魔角双层石墨烯中观测到了可能的密度波态和分数陈绝缘态^[40]. 虽然之前已经有几个工作讨论了转角石墨烯体系在分数填充下的关联态^[35,40,117,118,153-155], 但实验上观测到的多个密度波态^[40] 的相关理论研究还是空白. 因此, 这里继而讨论魔角双层石墨烯在分数填充 $7/2, 8/3$ 和 $11/3$ 的密度波态. $\nu = 7/2$ 填充时体系的基态是两倍超胞的密度波态, 而在 $\nu = 8/3$ 和 $11/3$ 时体系自发地形成 $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ 的莫尔超晶胞. 计算结果表明这三个分数填充的密度波态都是有能隙的, 其中 $7/2$ 和 $11/3$ 填充处是零陈数的关联绝缘态, 而 $8/3$ 填充处是陈数为 1 的陈绝缘态, 跟实验现象是符合的^[40]. Parker 等^[156] 发现如果对魔角双层石墨烯施加垂直磁场, 由于轨道磁性效应, 导带平带的带宽会大幅度下降, 同时 Berry 曲率在倒

空间的分布会变得更加均匀, 二者均更有利于分数陈绝缘体的出现. 因此在垂直磁场驱动下, 魔角双层石墨烯在 $11/3$ 填充处会经历从密度波态到分数陈绝缘态的拓扑相变^[40,156].

5.2 转角双层石墨烯中关联物态的非线性光学响应

正如前文讨论的, 在转角双层石墨烯的多处填充数下, 例如 $\nu = 0$ (电中性点)、 $\nu = \pm 2$ (正负半填充)、 $\nu = 3$ 以及 $7/2$ 等填充数, 均在实验上观测到了陈数为零的绝缘态, 没有体现出特殊的输运或光学特征. 因此, 在实验上很难去辨别这些“无特征”关联态的性质. 为了辨别这些“无特征”关联绝缘态的本质, 本综述开始关注这些态的非线性光学响应特征. 首先定义对电场 E 的二阶响应交变电流 j :

$$j^c(\omega_1 + \omega_2) = \sum_{a,b=x,y} \sigma_{ab}^c(\omega_1 + \omega_2) E_a(\omega_1) E_b(\omega_2). \quad (8)$$

(8) 式中的非线性光导率张量 σ_{ab}^c 可用来有效探测转角双层石墨烯体系中的各种关联物态. 当频率 $\omega_1 = \omega_2 = \omega$ 时, (8) 式则描述着二阶谐波响应过程. 对于二阶谐波响应, 其非线性极化率可以写成 $\chi_{ab}^c(2\omega) = i\sigma_{ab}^c(2\omega)/(\epsilon_0 2\omega)$, 这里的 ϵ_0 是真空介电常数.

魔角双层石墨烯在谷-自旋-子晶格空间内的自发对称性破缺态可以用序参量 $\hat{O}^{a,b,c} = \tau^a s^b \sigma^c$ 来描述, 这里 τ , s 和 σ 分别是在谷、自旋和子晶格空间定义的泡利矩阵. 首先从两种典型的零陈数关联绝缘态的非线性光学响应入手: Kramers 谷间相干态 ($\tau_x \sigma_y, \tau_y \sigma_y$)^[113,115] 和谷极化态 τ_z . 谷极化态 τ_z 既破坏了 C_{2z} 也破坏了 \mathcal{T} 对称性, 但是保留 $C_{2z}\mathcal{T}$ 对称性. 由于 C_{2z} 对称性的破坏, 谷极化态有非零的非线性光导率分量. 而 Kramers 谷间相干态 ($\tau_x \sigma_y, \tau_y \sigma_y$) 虽然破坏了 C_{2z} 对称性, 却保留了 $C'_{2z} = \tau_z C_{2z}$ 对称性. 这样一种新的对称性, 即 $U_v(1)$ 对称性和 C_{2z} 的乘积, 使得 Kramers 谷间相干态的非线性光学响应为零^[82]. 因此, Zhang 等^[82] 提出非线性光学响应可以认为是区分谷极化态和 Kramers 谷间相干态的有效实验探测手段. 对所有可能自发对称性破缺相的非线性光学响应的对称性分析发现, 所有类型的谷间相干态都不具有任何非线性光学响应. 只有三种对称破缺相具备非零的非线性光导率: 谷极化态 τ_z 、向列序态 ($\tau_z \sigma_x, \sigma_y$) 和子晶格极化态 σ_z ^[82,157]. 三种自发对称性破缺相对应的非线性光

表 2 具有非零的非线性光学响应的对称破缺相

Table 2. Three types of ordered states with non-vanishing nonlinear optical responses.

序参量	对称性允许的非线性光导率分量
τ_z	$\sigma_{xx}^x = -\sigma_{xy}^y = -\sigma_{yx}^y = -\sigma_{yy}^x$
$(\tau_z \sigma_x, \sigma_y)$	$\sigma_{xx,x}^x = \sigma_{xy,x}^y + \sigma_{yx,x}^y + \sigma_{yy,x}^x, \quad \sigma_{yy,y}^y = \sigma_{xx,y}^x + \sigma_{xy,y}^x + \sigma_{yx,y}^x,$ $\sigma_{xx,x}^x = -\sigma_{yy,y}^y, \quad \sigma_{xy,x}^y = -\sigma_{yx,y}^y, \quad \sigma_{yx,x}^y = -\sigma_{xy,y}^y, \quad \sigma_{yy,x}^x = -\sigma_{xx,y}^x, \quad \sigma_{yx,x}^y = -\sigma_{xy,y}^x$
σ_z	$\sigma_{xx}^x = -\sigma_{xy}^y = -\sigma_{yx}^y = -\sigma_{yy}^x, \quad \sigma_{xx}^y = \sigma_{xy}^x = \sigma_{yx}^x = -\sigma_{yy}^y$

导率分量总结在表 2 中. 图 5(f) 中处于电荷中性点、能量幅度为 1 meV 的序参量所对应的二次谐波响应极化率的数值计算结果验证了上述对称性分析^[82].

下面讨论对于魔角双层石墨烯器件进行非线性光学测量的可行性. 如今一个制备良好的转角双层石墨烯样品横向尺寸可以达到 10 μm 量级, 而红外频率的激光束光斑尺寸可以调至约 5 μm , 小于转角双层石墨烯样品的尺寸. 这样研究人员可以避免来自样品边缘的信号干扰, 并且通过垂直入射光来直接进行二次谐波响应旋转各向异性的实验观测. 实际上, 在非魔角双层石墨烯器件上已经观测到由魔角双层手性结构带来的二次谐波信号^[158]. 考虑到对于一些强关联体系, 如铜氧化物和铌氧化物^[159,160], 二次谐波响应测量已经成功揭示了它们的隐藏关联相. 因此该技术在魔角双层石墨烯体系上的实验方案是可期的, 可以用作区分各类“无特征”关联绝缘态的实验探针. 值得一提的是, 除了非线性光学探测之外, 近期两个理论课题组分别独立提出通过扫描隧道显微镜也可以区分各类关联绝缘态^[161,162].

6 转角多层石墨烯的自旋向列序态和磁场诱导拓扑转变

6.1 转角多层石墨烯体系中的自旋向列序态

类似转角双层石墨烯体系, 在转角多层石墨烯体系中也同样观测到一系列新奇的现象. 如在转角双层-单层石墨烯体系中观测到轨道陈绝缘态^[61-63]以及零陈数的自旋极化关联绝缘态^[61,64,65]. 而在转角双层-双层石墨烯体系中则观测到了自旋极化态^[66-69]、向列序态^[70]、广义维格纳晶格和奇异金属态^[71]等新奇物态. 这些都值得理论上深入研究探索背后深刻的物理机制. 这里着重关注转角多层石墨烯体系中的关联绝缘态.

首先对于转角双层-单层石墨烯体系, 在只考虑电子之间长程库仑相互作用时, Hartree-Fock 平均场计算表明, 转角双层-单层石墨烯体系在半填充处有两个准简并的基态: 一个是具有非零陈数的谷极化态, 而另一个是零陈数的自旋极化态. 这跟之前的理论结果是一致的^[163]. Zhang 等^[83]通过分析证明, 在一定的位移电场下, 当转角多层石墨烯体系存在孤立的导带平带时, 其单带波函数内禀性质就保证了这种准简并性的存在. 但是如果进一步考虑 Hubbard 相互作用, 自旋极化态的能量就会被降低, 使得拓扑平庸的自旋极化态成为体系唯一的基态, 而自旋极化态也同时具有破坏 C_{3z} 对称性的向列序, 由 $(\tau_z \sigma_x, \sigma_y)$ 以及 $(\tau_z \sigma_y, \sigma_x)$ 两组序参量描述. 在位 Hubbard 相互作用使得体系在两个准简并态中选择自旋极化向列态作为基态, 这一机制在其他各种转角多层石墨烯体系, 如转角双层-双层石墨烯、转角三层-单层石墨烯、转角三层-双层石墨烯等体系中, 都是广泛存在的^[83]. 图 6(b) 给出了转角双层-双层石墨烯在位移电场 $|U_d| = 0.04 \text{ eV}$ 下的电荷分布图, 呈现出条纹状图案, 符合近期扫描隧道显微镜的观测结果^[70].

6.2 转角多层石墨烯体系中磁场调控的拓扑相变

如果对转角石墨烯体系施加垂直磁场, 就会引发自旋塞曼效应和轨道磁性效应, 前者可以用自旋塞曼劈裂描述, 后者则需要细致地讨论. 首先, 垂直磁场会在平带空间内衍生出一系列朗道能级, 形成依赖于每个莫尔晶胞内磁通量数量的 Hofstadter 蝴蝶形能谱^[164]. 其次, 转角多层石墨烯体系的平带携带巨大的谷轨道磁矩, 如转角双层-单层石墨烯体系中轨道磁矩约 $10\mu_B$ ^[47], 因此磁场也会通过轨道塞曼效应引起显著的谷劈裂^[51,165-168]. 而且, 垂直磁场也会导致陈能带的电荷密度改变, 可以用 Středa 公式描述: $\delta\rho_\mu = \delta n_\mu = C_\mu B_z e/h$ ^[169], 这里

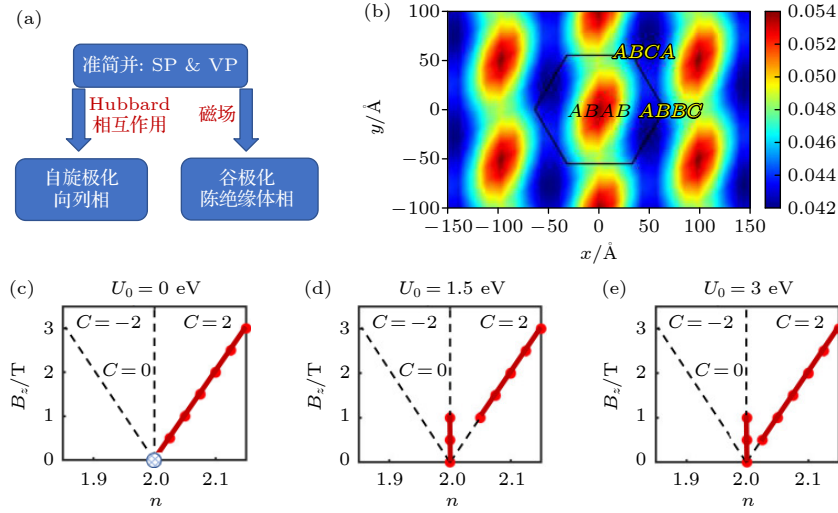


图 6 (a) 转角多层石墨烯体系在半填充时自旋极化和谷极化态的竞争关系。“SP”和“VP”分别代表自旋极化态和谷极化态；(b) 转角双层-双层石墨烯半填充处的实空间电荷分布^[83]；(c)–(e) 转角双层-单层石墨烯体系在不同 Hubbard 参数和磁场下衍生出的不同陈数的绝缘态，用红线标记^[83]

Fig. 6. (a) Competition between spin polarized and valley polarized states in twisted multilayer graphene system at half filling. “SP” and “VP” stand for “spin polarized” and “valley polarized” respectively; (b) charge density distribution in real space at half filling for twisted double bilayer graphene^[83]; (c)–(e) calculated gapped states with different Chern numbers remarked by red lines under magnetic fields in the twisted bilayer-monolayer graphene system^[83].

C_μ 是谷 μ 平带的陈数， δn_μ 表示由外磁场引起的谷 μ 电荷密度变化 ($\mu = \mp$ 表示 K 和 K' 谷)。由于 K 和 K' 谷的拓扑平带具有相反陈数，因此由外磁场引起的 K 和 K' 谷的电荷密度变化相反，故该效应也同样会导致谷极化。这种效应可以通过在平带子空间的密度矩阵里添加贝里曲率修正来描述^[170]。因此，垂直磁场往往驱动着体系变成破缺时间反演对称性的谷极化态，并通常具有着非零的陈数。

图 6 在 Hubbard 参数 U_0 取不同值时，在填充数 n 和磁场 B_z 的参数空间里展示了不同陈数的关联绝缘态^[83]。轨道塞曼劈裂和磁场导致的电荷密度变化，会跟在位 Hubbard 相互作用相互竞争：前者使得体系倾向于谷极化的量子反常霍尔态，而后者偏向于零陈数的自旋极化向列序态。因此，随着磁场逐渐增加，体系发生了从自旋极化向列序态到量子反常霍尔态的拓扑相变。这一机制之后在转角双层-双层石墨烯体系中得到了实验验证^[84]。

7 转角双层石墨烯的莫尔声子和电声耦合

7.1 转角双层石墨烯的声子结构

在魔角双层石墨烯中实验观测到的一些现

象，诸如非常规超导以及随温度呈线性关系的电阻^[15,16,22-27,31,171,172]等，不仅取决于魔角双层石墨烯的能带拓扑性和库仑关联效应，还与该体系的声子和电声耦合效应密切相关^[173-184]。本节主要讨论 Liu 等^[85]利用深度学习分子动力学结合紧束缚模型研究的魔角双层石墨烯体系的低频莫尔声子性质和电声耦合效应。

魔角双层石墨烯中的每个莫尔超晶胞都包含一万个以上的碳原子，因此每个波矢有三万个以上莫尔声子模式，这为第一性原理计算魔角双层石墨烯的声子模式带来巨大挑战。因而采用“深度学习分子动力学”方法^[185]来研究魔角双层石墨烯的声子性质。具体而言，首先对大转角、小体系的转角石墨烯体系进行基于密度泛函理论的第一性原理计算，生成大量总能、力和应力的数据，然后用这些数据来训练神经网络，生成一个碳原子之间的多体经典势函数。之后再把这个基于神经网络的经典多体势函数外延到魔角双层石墨烯，进行晶格弛豫和声子谱的计算^[85]。计算结果如图 7 所示。特别地，在魔角双层石墨烯中有很多低频的面外“弯曲”声子模式，且不能被双层石墨烯的面外声学支声子模式单纯折叠到莫尔布里渊区来解释。下面重点分析这些莫尔尺度上的面外“弯曲”声子模式^[85]。

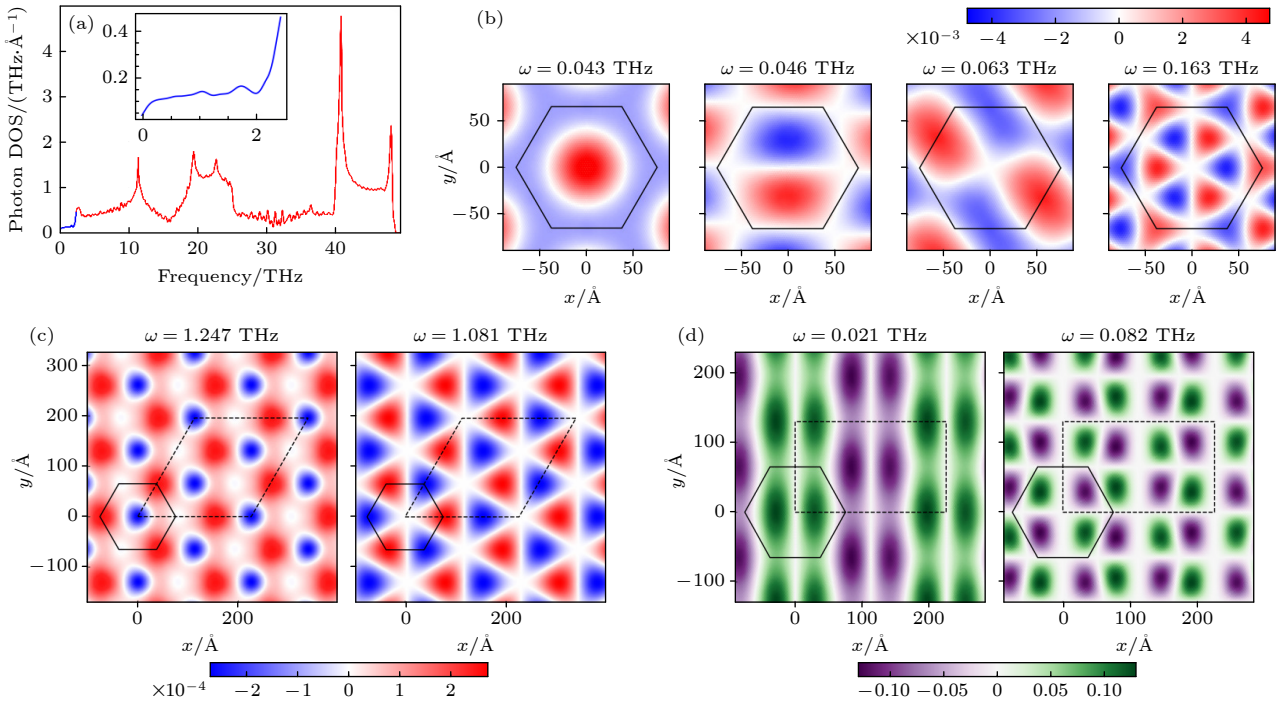


图 7 (a) 魔角双层石墨烯的声子态密度, 蓝色线条为 0—2.4 THz 的低频声子的声子态密度^[85]; (b) 魔角双层石墨烯在 Γ 点的声子软模, 莫尔原胞用黑色六边形标注出^[85]; (c) 魔角双层石墨烯在 K 点的声子极化, 其中 $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ 超胞用黑色虚线标注^[85]; (d) 魔角双层石墨烯在 M 点的声子模, 双倍莫尔超胞用黑色虚线标注^[85]

Fig. 7. (a) Phonon density of states (DOS) of magic-angle TBG (MATBG)^[85], where the blue line shows the low-frequency DOS from 0 to 2.4 THz; (b) soft phonon modes in the MATBG at the Γ point, where the black hexagon marks the moiré primitive cell^[85]; (c) phonon polarizations at K point in the MATBG, in which the $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ moiré supercell are marked with dashed black lines^[85]; (d) phonon modes at M point in the MATBG, in which the double moiré supercell are marked with dashed black lines^[85].

7.2 魔角双层石墨烯的声子模式

首先讨论莫尔布里渊区中 Γ 点 (Γ_s 点) 处的声子模式. 图 7(b) 给出了频率在 0.043, 0.046, 0.063 和 0.163 THz 的面外振动声子模^[85]. 其中, 频率为 0.046 THz 的声子模是一种偶极矩的振动模, 明显破坏了 C_{2z} 和 C_{3z} 对称性. 频率为 0.063 THz 的声子模式则是具有 D_2 对称性的四极矩模式, 它与另一个频率相同的模式形成 D_6 点群的 E_2 表示. 这个模式与平带电子的耦合相对较强, 有效电声耦合系数接近 0.1, 对电荷密度和电子结构具有重要影响^[85]. 若假设这个声子模式被“冻结”, 魔角双层石墨烯的电荷密度分布将会随之改变, 具有四极矩的电荷序. 最后, 频率为 0.163 THz 的声子模表现出“八极矩”的振动模式, 也与平带电子具有较强的耦合 (有效电声耦合系数达到 0.2)^[85]. 由于这个模式破坏 C_{2z} 对称性, 故而可以在平带的电荷中性点打开能隙, 为该体系在电中性点观测到的关联绝缘态提供了新的视角. 值得一提的是, 通过深度学习分子动力学得出的莫尔声子模式结果可以被另一种方法, 即“截断原子平面波方法”很好地重复^[186].

在莫尔布里渊区的 K 点 (K_s 点), Liu 等^[85] 计算结果表明魔角双层石墨烯具有手性低频莫尔声子. 图 7(c) 给出了在 K_s 点的一系列双重简并的手性声子模式的局域声子极化. 在 K_s 点处还存在着一些非简并的“螺旋”声子模式, 其净手性为零, 但在实空间具有非平凡的声子极化分布. 在莫尔布里渊区 M 点 (M_s 点), 存在着频率极低的软模声子形成反相位调制的条纹, 具有偶极矩、四极矩形态, 如图 7(d) 所示^[85]. M_s 点处的软声子模很容易通过电声耦合效应变得不稳定, 进而产生由声子不稳定性驱动的新的电荷密度波态, 并破坏体系的平移对称性. 这种由 M_s 点的声子不稳定性驱动的电荷密度波为实验上观测到的填充数为 1 和 3 处的零陈数关联绝缘态提供了新的解释^[22,40].

7.3 魔角双层石墨烯的电声耦合效应

如上文所述, 有些与电子耦合较强的低频声子模式会由于电声耦合效应而不再稳定, 被“冻结”, 从而发生结构相变和电子性质的改变. 为了讨论上述声子模式对魔角双层石墨烯电子结构的影响,

Liu 等^[85]考虑一些与平带电子耦合较强的低频声子模式被人为地“冻结”，并利用紧束缚模型计算其对电子性质的影响. 如图 8(a) 所示，由于图 7(b) 中频率约为 0.046 THz 的声子模式打破了 C_{2z} 对称性，当声子平均振幅约为 0.05 Å 时，狄拉克点会打开一个 0.75 meV 的能隙，而且带隙的大小几乎是随着声子模式的平均振幅线性增加的^[85]. 进一步地，图 8(c) 给出了图 7(b) 中频率为 0.163 THz 的“八极矩”声子模式在平带子空间内的电声耦合矩阵元和有效电声耦合强度，当费米能级处于平带的范霍夫奇点处时其有效电声耦合系数可以达到 0.2. 低频声子和电子之间的耦合还能够显著改变实空间的电荷密度分布. 当一个特定的四极矩声子模式(约 0.046 THz)被“冻结”时，局部电荷密度由于与被冻结声子的耦合呈现出四极矩的分布，如图 8(d) 所示，这与 2019 年报道的扫描隧道显微镜观测到的实验结果完全一致^[18].

综上所述，莫尔声子与电声耦合在魔角双层石墨烯体系中起到了重要作用. 该体系中的声子不稳

定性可能产生新奇的电荷序，对理解莫尔石墨烯体系的关联物态非常关键. 除此之外，电声耦合效应对理解魔角双层石墨烯中的超导态和随温度呈线性关系的电阻行为同样至关重要，因此未来值得更多的研究和探索.

8 新型二维材料异质结体系的新奇物理以及未来展望

莫尔石墨烯体系之所以具有如此丰富而新奇的物理，主要得益于两点：第一，小转角形成的大尺度莫尔超晶格将石墨烯低能带折叠到微型莫尔布里渊区中，使所得子能带带宽被大大减小，从而变相地加强电子间库仑相互作用效应，形成各种各样的关联态；第二，石墨烯的狄拉克电子波函数的贝里曲率在狄拉克锥附近富集，为莫尔石墨烯体系中各种非平庸拓扑性质打下基础. 因此，可以期待石墨烯在其他类型的超晶格下也应有着与莫尔石墨烯体系类似的效应.

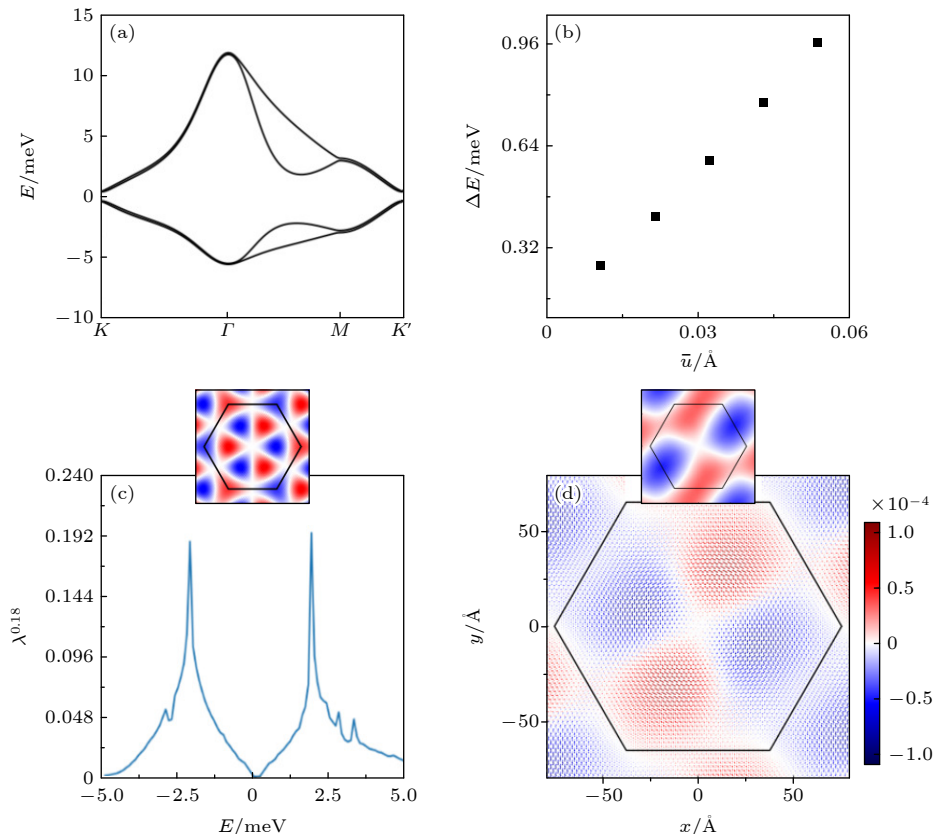


图 8 (a) 八极矩声子模式被冻结后在魔角双层石墨烯电中性点打开能隙^[85] (b) 能带间隙随声子振幅线性增加^[85]. (c) 魔角双层石墨烯中八极矩声子的电声耦合强度随费米能级的变化^[85]; (d) 四极矩声子被冻结后产生四极矩的电荷序^[85]

Fig. 8. (a) Flat bands of magic-angle TBG with the octupolar-type phonon modes under frozen mode approximation^[85]; (b) increasing bandgap as a function of average displacement amplitudes^[85]; (c) strength of electron-phonon coupling verse Fermi level in the magic-angle TBG^[85]; (d) charge order with the quadrupolar-type phonon modes under frozen mode approximation^[85].

Lu 等^[86]和 Wang 等^[87]指出, 如果将石墨烯放置于具有长程电荷序的绝缘衬底之上, 会构成一种新型二维材料异质结体系 (见图 9(a)). 长程电荷序的形成本身也依赖于强电子间库仑相互作用, 如低浓度的二维电子气在长程库仑作用的驱动下会进入到维格纳晶体态^[187-189], 其周期会随着载流子浓度的变化而被动态调制. 这种长程电荷序产生的电势场正提供了石墨烯所需要的超晶格. 当石墨烯放置于绝缘衬底上而与其长程电荷序耦合时, 石墨烯和长程电荷序的性质将会协同改变, 极有可能涌现出多姿多彩的物理现象. 一方面, 电子将会通过石墨烯与衬底材料的界面以量子隧穿的形式发生转移, 从而调制衬底表面长程电荷序的性质, 如它们的周期和电荷局域分布; 另一方面, 长程电荷序提供的超晶格电势场将影响石墨烯中的狄拉克电子, 进而改变其单电子能带结构甚至是拓扑性质.

长程电荷序可以在多种电子间相互作用的驱动机制下形成, 如上文所述的维格纳晶体机制、由

声子不稳定性或费米面嵌套导致的电荷密度波机制、激子绝缘体机制等. 利用过渡金属元素局域化原子轨道的强关联效应, 上述体系可通过把石墨烯放置在过渡金属化合物薄膜上来实现. 实验上, 这样的异质结体系已经在以 CrOCl , $1T\text{-TaS}_2$, CrI_3 为衬底的单层石墨烯器件中实现^[87,190,191]. 值得注意的是, 形成长程电荷序必须满足石墨烯狄拉克点与衬底表面能带的价带顶或导带底能量接近. 只有这样, 研究人员才能用电栅极调整它们的相对位置, 从而使石墨烯的载流子转移到衬底的能带中. 并且, 为了形成维格纳晶体, 衬底能带中的载流子所对应的无量纲 Wigner-Seitz 半径 ($r_s = gm^*/\sqrt{\pi n_{\text{sub}}}m_0a_B^0$, 其中, n_{sub} 为载流子浓度, m^* 和 m_0 分别是衬底能带的有效质量和元电荷质量, a_B^0 是玻尔半径, g 是其他自由度 (如能谷自由度) 的简并度), 必须大于临界值 ($r_s \gtrsim 31$)^[192]. 以此作为依据通过高通量密度泛函理论计算搜索范德瓦耳斯二维材料, Lu 等^[86]发现, 除了上述材料外, 还可以找到很多其他材料, 如 YI_3 , ReSe_2 和 WS_2 等, 来作为石墨烯的绝缘衬底实现上述物理图像.

8.1 连续模型

Lu 等^[86]进一步指出, 描述长程电荷序衬底的石墨烯体系的哈密顿量可分为三部分: 石墨烯、长程电荷序和它们之间的耦合作用. 石墨烯与绝缘衬底之间距离足够远, 从而能忽略两者以任何如轨道杂化、量子交换这样指数衰减的短程耦合, 只考虑长程库仑相互作用. 长程电荷序和其对石墨烯电子的作用将能整合到一个等效超晶格势场中. 与莫尔石墨烯体系类似, 静电势场超晶格的晶格尺度远远大于石墨烯的单胞尺度, 从而谷之间的散射可以被忽略. 因此, 石墨烯的低能电子可以用连续模型框架下的与长周期势场耦合的狄拉克费米子来描述^[86]. 如图 9 所示, 在等效超晶格势场下, 石墨烯的能带将会折叠到对应的微型布里渊区, 从而形成子能带, 进而降低狄拉克点的费米速度^[86]. 在特定的晶格参数下, 费米速度甚至会变为零, 或者进一步, 狄拉克锥的导带和价带发生交叉, 进而发生拓扑相变, 能带谷陈数变得非零^[86].

8.2 相互作用效应

Lu 等^[86]指出, 这类石墨烯-绝缘体异质结体

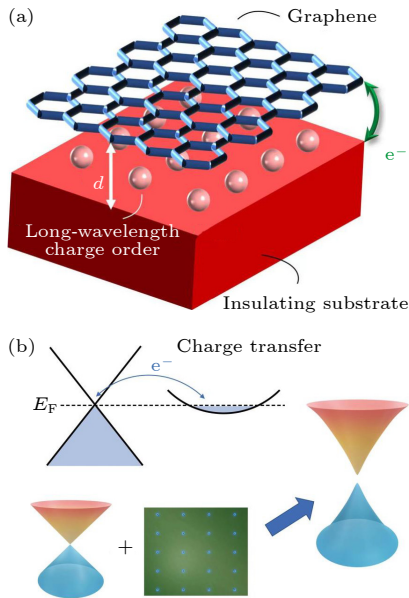


图 9 (a) 单层石墨烯与绝缘衬底上的长程电荷序耦合; (b) 电子转移从石墨烯转移到衬底中形成的长程电荷序产生超晶格势场反作用于石墨烯的电子上, 进而在电子间相互作用的驱动下, 在狄拉克点打开能隙并大大增强在其附近的费米速度^[86]

Fig. 9. (a) Coupling between graphene and long-range charge order within insulating substrate; (b) long-range charge order in the substrate with the charge transfer from graphene to substrate, can provide superlattice potential on the graphene's electron and open a gap at the Dirac point driven by electron interaction. And the Fermi velocity near the Dirac point is enhanced^[86].

系更引人入胜的是超晶格的存在能大大增强相互作用效应. 超晶格势场降低费米速度, 使等效精细结构常数超过临界值 $\alpha_c \approx 0.92$ [193], 狄拉克点会变得不稳定 (见图 2). 尽管该体系仍有着保护狄拉克点的 $C_{2z}\mathcal{T}$ 对称性, 然而, 在相互作用驱动下, 处于电中性点的石墨烯发生自发性对称性破缺, 形成子晶格能隙, 破坏上述对称性. 有意思的是, 尽管在非相互作用框架下超晶格的存在降低了费米速度, 但是由于交换相互作用效应, 费米速度反而最终会增强超过两倍. 与之形成对比的是, 即使在无衬底的石墨烯中, 实验上测到了被库仑相互作用增强后的费米速度 [5,194], 却从未测到任何能隙. 这进一步证实了超晶格对破坏狄拉克点起到了不可或缺的关键作用 [86]. 最近, 上述效应在绝缘 CrOCl 衬底上的单层石墨烯中得以展现 [87]. 输运实验表明该体系在较高温度 (约 100 K) 和极低磁场下 (小于 0.1 T) 就能看到量子霍尔平台 [87], 说明费米速度被极大地增强. 更惊人的是, 石墨烯确实被 CrOCl 打开了能隙 (约 5—10 meV) [87]. Lu 等 [86] 指出, 这些现象都能用上述模型在重整化群 + Hartree-Fock 计算框架内完美地解释.

总的来说, 由石墨烯和其绝缘衬底长程电荷序的耦合而成的新型二维材料异质结体系是一个能同时研究相互作用效应和拓扑物理的新平台, 为设计基于石墨烯的电子学器件提供了新的思路. 并且, 这样的异质结体系是把两类相互作用电子系, 即石墨烯层中的相互作用狄拉克费米子和衬底层的相互作用电子气 (对于莫特绝缘体衬底, 应该称为相互作用的“双占据子”) 耦合到一起, 可以期待还会衍生出更加丰富的物理现象, 本文所介绍的结果仅仅是冰山一角. 比如, 长程序所携带的自由度可以不限于电荷, 还可以是轨道磁矩、自旋、谷甚至是超导序参量. 它们与石墨烯中狄拉克电子的相互作用有望形成新的量子态, 值得进一步探索和研究.

9 结论与展望

本综述讨论了一系列莫尔石墨烯体系的新奇拓扑关联物态. 首先讨论了转角双层石墨烯和转角多层石墨烯体系中的拓扑平带和显著的轨道磁性. 其中, 魔角双层石墨烯中的拓扑平带可以从零隙朗道能级的图像去理解, 该图像可以很简明地解释实

验上观测到的关联绝缘态、量子反常霍尔效应等新奇现象. 而在转角多层石墨烯中普遍存在具有非零谷陈数的拓扑平带, 其平带波函数携带莫尔尺度上的手性电流, 进而可以通过自发破缺时间反演对称性而产生轨道铁磁态. 并且, 具有非零谷陈数的拓扑平带会引起接近量子化的压电响应, 这一点可以在实验上用来识别拓扑平带的具体谷陈数. 针对各种转角多层石墨烯和各种交错转角多层石墨烯, 则有着普适的手性分解规则, 可以用来快速判断低能电子能带的色散特征.

由于转角石墨烯体系中的平带能带宽度很小, 电子库仑相互作用的影响就相对十分显著, 能够驱动着体系进入关联相. 本综述讨论了魔角双层石墨烯中的关联绝缘态、密度波态以及单粒子激发谱的级联转变等新奇物性, 并提出非线性光学响应可以当作区分各类“无特征”关联绝缘态的实验探针. 而在转角多层石墨烯体系中, 在一定的位移电场下, 当体系中存在孤立的导带平带时, 体系中拓扑平庸的自旋极化向列态和谷极化量子反常霍尔态相互竞争: 原子尺度上的在位 Hubbard 相互作用使得体系偏向于前者, 而垂直磁场则驱动着体系向后者转变, 产生相互作用基态之间的拓扑相变.

除了电子-电子库仑相互作用外, 声子不稳定性也同样在转角石墨烯体系中发挥着重要作用. 针对转角双层石墨烯声子性质的深度学习分子动力学研究, 发现了若干极低频率的面外“弯曲”声子模式, 这些极低频模式与电子耦合可能导致关联绝缘态以及电四极矩序, 并发现了一些声子不稳定性借由电声耦合作用而诱导的新奇电荷序, 与实验现象十分符合.

由转角石墨烯体系的启发, 我们认识到石墨烯与周期性势能场的耦合也会有着类似的效应. 于是便讨论了石墨烯在绝缘衬底上形成的莫尔超晶格体系. 通过门电压调控的电荷转移, 在绝缘衬底上的载流子由于长程库仑作用可以通过维格纳晶体的机制形成长程电荷序, 并与石墨烯中的狄拉克费米子产生库仑耦合, 降低了狄拉克电子的非相互作用费米速度, 进而在石墨烯层内电子间库仑作用驱动下衍生出新的关联拓扑物态.

莫尔石墨烯体系的一系列新奇物态极大地丰富了凝聚态物理的研究绘景. 其中, 莫尔轨道磁性态作为崭新的物态, 其对于外加电场 [21,30,61,96] 和磁场 [167,195] 的响应、集体激发 [196-199] 和量子临界现象

仍处于研究的早期阶段. 另外值得一提的是, 人们在不同的转角石墨烯体系中发现了非常规超导现象^[15,73-76,200], 但其具体的超导机理仍然在激烈争论中^[120,125,130,173,174,201-205]. 声子和电声耦合效应对于转角石墨烯体系中的超导态也许扮演着重要角色^[173,174], 尤其是电子间库仑相互作用效应和电声耦合效应之间的竞争和促进关系, 亟需进一步的研究和理解. 近期人们提出的魔角双层石墨烯和三层石墨烯体系的拓扑重费米子图像^[145,147,206]也许对理解这类体系中的超导态有重要意义.

我们相信在莫尔超晶格体系中的研究不会局限于石墨烯体系, 而是会延伸到包含过渡金属二硫化物^[207-219]、二维磁性半导体^[220-223]、石墨烯-绝缘体异质结^[87,190,191]等一系列的莫尔超晶格异质结体系. 实验上已经成功制备了一系列过渡金属二硫化物的莫尔体系, 并观测到了非常规莫尔激子^[207-210]、关联绝缘态^[211-214]、轨道铁磁态^[211]和非线性霍尔效应^[215,224]等一系列新奇现象. 特别地, Mak等^[214]在MoTe₂/WSe₂的二维莫尔超晶格异质结体系中发现了部分填充下的量子反常霍尔效应, 并通过光学测量指出这是一个新奇的谷间相干的量子反常霍尔态^[225]. 这一系列新的进展表明关于莫尔超晶格异质结体系的研究方兴未艾, 还有很多新的问题有待研究人员去深入讨论.

参考文献

- [1] Novoselov K S, Geim A K, Morozov S V, Jiang D E, Zhang Y, Dubonos S V, Grigorieva I V, Firsov A A 2004 *Science* **306** 666
- [2] Zhang Y, Tan Y W, Stormer H L, Kim P 2005 *Nature* **438** 201
- [3] Du X, Skachko I, Duerr F, Luican A, Andrei E Y 2009 *Nature* **462** 192
- [4] Neto A C, Guinea F, Peres N M, Novoselov K S, Geim A K 2009 *Rev. Mod. Phys.* **81** 109
- [5] Kotov V N, Uchoa B, Pereira V M, Guinea F, Neto A C 2012 *Rev. Mod. Phys.* **84** 1067
- [6] Tran T T, Bray K, Ford M J, Toth M, Aharonovich I 2016 *Nat. Nanotechnol.* **11** 37
- [7] Mak K F, Lee C, Hone J, Shan J, Heinz T F 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 136805
- [8] Splendiani A, Sun L, Zhang Y, Li T, Kim J, Chim C Y, Galli G, Wang F 2010 *Nano Lett.* **10** 1271
- [9] Radisavljevic B, Radenovic A, Brivio J, Giacometti V, Kis A 2011 *Nat. Nanotechnol.* **6** 147
- [10] Manzeli S, Ovchinnikov D, Pasquier D, Yazyev O V, Kis A 2017 *Nat. Rev. Mater.* **2** 17033
- [11] Huang B, Clark G, Navarro-Moratalla E, Klein D R, Cheng R, Seyler K L, Zhong D, Schmidgall E, McGuire M A, Cobden D H, Yao W, Xiao D, Jarillo-Herrero P, Xu X 2017 *Nature* **546** 270
- [12] Gong C, Li L, Li Z, Ji H, Stern A, Xia Y, Cao T, Bao W, Wang C, Wang Y, Qiu Z Q, Cava R J, Louie S G, Xia J, Zhang X 2017 *Nature* **546** 265
- [13] Bistritzer R, MacDonald A H 2011 *PNAS* **108** 12233
- [14] Cao Y, Fatemi V, Demir A, et al. 2018 *Nature* **556** 80
- [15] Cao Y, Fatemi V, Fang S, Watanabe K, Taniguchi T, Kaxiras E, Jarillo-Herrero P 2018 *Nature* **556** 43
- [16] Lu X, Stepanov P, Yang W, Xie M, Aamir M A, Das I, Urgell C, Watanabe K, Taniguchi T, Zhang G, Bachtold A, MacDonald A H, Efetov D K 2019 *Nature* **574** 653
- [17] Kerelsky A, McGilly L J, Kennes D M, et al. 2019 *Nature* **572** 95
- [18] Jiang Y, Lai X, Watanabe K, Taniguchi T, Haule K, Mao J, Andrei E Y 2019 *Nature* **573** 91
- [19] Xie Y, Lian B, Jäck B, Liu X, Chiu C L, Watanabe K, Taniguchi T, Bernevig B A, Yazdani A 2019 *Nature* **572** 101
- [20] Choi Y, Kemmer J, Peng Y, Thomson A, Arora H, Polski R, Zhang Y, Ren H, Alicea J, Refael G, von Oppen F, Watanabe K, Taniguchi T, Nadj-Perge S 2019 *Nat. Phys.* **15** 1174
- [21] Serlin M, Tschirhart C, Polshyn H, Zhang Y, Zhu J, Watanabe K, Taniguchi T, Balents L, Young A 2020 *Science* **367** 900
- [22] Stepanov P, Das I, Lu X, Fahimniya A, Watanabe K, Taniguchi T, Koppens F H L, Lischner J, Levitov L, Efetov D K 2020 *Nature* **583** 375
- [23] Saito Y, Ge J, Watanabe K, Taniguchi T, Young A F 2020 *Nat. Phys.* **16** 926
- [24] Liu X, Wang Z, Watanabe K, Taniguchi T, Vafek O, Li J 2021 *Science* **371** 1261
- [25] Yankowitz M, Chen S, Polshyn H, Zhang Y, Watanabe K, Taniguchi T, Graf D, Young A F, Dean C R 2019 *Science* **363** 1059
- [26] Codecido E, Wang Q, Koester R, Che S, Tian H, Lv R, Tran S, Watanabe K, Taniguchi T, Zhang F, Bockrath M, Lau C N 2019 *Sci. Adv.* **5** eaaw9770
- [27] Cao Y, Rodan-Legrain D, Park J M, Yuan N F, Watanabe K, Taniguchi T, Fernandes R M, Fu L, Jarillo-Herrero P 2021 *Science* **372** 264
- [28] Balents L, Dean C R, Efetov D K, Young A F 2020 *Nat. Phys.* **16** 725
- [29] Andrei E Y, Efetov D K, Jarillo-Herrero P, MacDonald A H, Mak K F, Senthil T, Tutuc E, Yazdani A, Young A F 2021 *Nat. Rev. Mater.* **6** 201
- [30] Sharpe A L, Fox E J, Barnard A W, Finney J, Watanabe K, Taniguchi T, Kastner M A, Goldhaber-Gordon D 2019 *Science* **365** 605
- [31] Stepanov P, Xie M, Taniguchi T, Watanabe K, Lu X, MacDonald A H, Bernevig B A, Efetov D K 2021 *Phys. Rev. Lett.* **127** 197701
- [32] Nuckolls K P, Oh M, Wong D, Lian B, Watanabe K, Taniguchi T, Bernevig B A, Yazdani A 2020 *Nature* **588** 610
- [33] Wu S, Zhang Z, Watanabe K, Taniguchi T, Andrei E Y 2021 *Nat. Mater.* **20** 488
- [34] Das I, Lu X, Herzog-Arbeitman J, Song Z D, Watanabe K, Taniguchi T, Bernevig B A, Efetov D K 2021 *Nat. Phys.* **17** 710
- [35] Pierce A T, Xie Y, Park J M, et al. 2021 *Nat. Phys.* **17** 1210
- [36] Shen C, Ying J, Liu L, Liu J, Li N, Wang S, Tang J, Zhao Y, Chu Y, Watanabe K, Taniguchi T, Yang R, Shi D, Qu F, Lu L, Yang W, Zhang G 2021 *Chin. Phys. Lett.* **38** 047301
- [37] Liu J, Dai X 2021 *Nat. Rev. Phys.* **3** 367

- [38] Tschirhart C L, Serlin M, Polshyn H, Shragai A, Xia Z, Zhu J, Zhang Y, Watanabe K, Taniguchi T, Huber M E, Young A F 2021 *Science* **372** 1323
- [39] Díez-Merida J, Díez-Carlón A, Yang S, Xie Y M, Gao X J, Watanabe K, Taniguchi T, Lu X, Law K T, Efetov D K 2021 arXiv: 2110.01067 [cond-mat.supr-con]
- [40] Xie Y, Pierce A T, Park J M, Parker D E, Khalaf E, Ledwith P, Cao Y, Lee S H, Chen S, Forrester P R, Watanabe K, Taniguchi T, Vishwanath A, Jarillo-Herrero P, Yacoby A 2021 *Nature* **600** 439
- [41] Song Z, Wang Z, Shi W, Li G, Fang C, Bernevig B A 2019 *Phys. Rev. Lett.* **123** 036401
- [42] Ahn J, Park S, Yang B J 2019 *Phys. Rev. X* **9** 021013
- [43] Po H C, Zou L, Senthil T, Vishwanath A 2019 *Phys. Rev. B* **99** 195455
- [44] Tarnopolsky G, Kruchkov A J, Vishwanath A 2019 *Phys. Rev. Lett.* **122** 106405
- [45] Liu J, Liu J, Dai X 2019 *Phys. Rev. B* **99** 155415
- [46] Zhang Y H, Mao D, Cao Y, Jarillo-Herrero P, Senthil T 2019 *Phys. Rev. B* **99** 075127
- [47] Liu J, Ma Z, Gao J, Dai X 2019 *Phys. Rev. X* **9** 031021
- [48] Chittari B L, Chen G, Zhang Y, Wang F, Jung J 2019 *Phys. Rev. Lett.* **122** 016401
- [49] Chebrolu N R, Chittari B L, Jung J 2019 *Phys. Rev. B* **99** 235417
- [50] Koshino M 2019 *Phys. Rev. B* **99** 235406
- [51] Lee J Y, Khalaf E, Liu S, Liu X, Hao Z, Kim P, Vishwanath A 2019 *Nat. Commun.* **10** 5333
- [52] Khalaf E, Kruchkov A J, Tarnopolsky G, Vishwanath A 2019 *Phys. Rev. B* **100** 085109
- [53] Li X, Wu F, MacDonald A H 2019 arXiv: 1907.12338 [cond-mat.mtrl-sci]
- [54] Ma Z, Li S, Zheng Y W, Xiao M M, Jiang H, Gao J H, Xie X 2021 *Science Bulletin* **66** 18
- [55] Zhang S, Xie B, Wu Q, Liu J, Yazyev O V 2020 arXiv: 2012.11964 [cond-mat.mes-hall]
- [56] Xie B, Peng R, Zhang S, Liu J 2022 *npj Comput. Mater.* **8** 110
- [57] Ledwith P J, Vishwanath A, Khalaf E 2022 *Phys. Rev. Lett.* **128** 176404
- [58] Wang J, Liu Z 2022 *Phys. Rev. Lett.* **128** 176403
- [59] Liu Z, Shi W, Yang T, Zhang Z 2022 *J. Mater. Sci. Technol.* **111** 28
- [60] Tong L H, Tong Q, Yang L Z, Zhou Y Y, Wu Q, Tian Y, Zhang L, Zhang L, Qin Z, Yin L J 2022 *Phys. Rev. Lett.* **128** 126401
- [61] Polshyn H, Zhu J, Kumar M, et al. 2020 *Nature* **588** 66
- [62] He M, Zhang Y H, Li Y, Fei Z, Watanabe K, Taniguchi T, Xu X, Yankowitz M 2021 *Nat. Commun.* **12** 4727
- [63] Li S Y, Wang Z, Xue Y, Wang Y, Zhang S, Liu J, Zhu Z, Watanabe K, Taniguchi T, Gao H j, Jiang Y, Mao J 2022 *Nat. Commun.* **13** 4225
- [64] Chen S, He M, Zhang Y H, Hsieh V, Fei Z, Watanabe K, Taniguchi T, Cobden D H, Xu X, Dean C R, Yankowitz M 2021 *Nat. Phys.* **17** 374
- [65] Xu S, Al Ezzi M M, Balakrishnan N, Garcia-Ruiz A, Tsim B, Mullan C, Barrier J, Xin N, Piot B A, Taniguchi T, Watanabe K, Carvalho A, Mishchenko A, Geim A K, Fal'ko V I, Adam S, Neto A H C, Novoselov K S, Shi Y 2021 *Nat. Phys.* **17** 619
- [66] Liu X, Hao Z, Khalaf E, Lee J Y, Ronen Y, Yoo H, Haei Najafabadi D, Watanabe K, Taniguchi T, Vishwanath A, Kim P 2020 *Nature* **583** 221
- [67] Cao Y, Rodan-Legrain D, Rubies-Bigorda O, Park J M, Watanabe K, Taniguchi T, Jarillo-Herrero P 2020 *Nature* **583** 215
- [68] Shen C, Chu Y, Wu Q, Li N, Wang S, Zhao Y, Tang J, Liu J, Tian J, Watanabe K, Taniguchi T, Yang R, Meng Z Y, Shi D, Yazyev O V, Zhang G 2020 *Nat. Phys.* **16** 520
- [69] Burg G W, Zhu J, Taniguchi T, Watanabe K, MacDonald A H, Tutuc E 2019 *Phys. Rev. Lett.* **123** 197702
- [70] Rubio-Verdú C, Turkel S, Song Y, Klebl L, Samajdar R, Scheurer M S, Venderbos J W F, Watanabe K, Taniguchi T, Ochoa H, Xian L, Kennes D M, Fernandes R M, Rubio Á, Pasupathy A N 2022 *Nat. Phys.* **18** 196
- [71] Li Q, Cheng B, Chen M, Xie B, Xie Y, Wang P, Chen F, Liu Z, Watanabe K, Taniguchi T, Liang S J, Wang D, Wang C, Wang Q H, Liu J, Miao F 2022 *Nature* **609** 479
- [72] Li Y, Zhang S, Chen F, Wei L, Zhang Z, Xiao H, Gao H, Chen M, Liang S, Pei D, Xu L, Watanabe K, Taniguchi T, Yang L, Miao F, Liu J, Cheng B, Wang M, Chen Y, Liu Z 2022 *Adv. Mater.* **34** 2205996
- [73] Kim H, Choi Y, Lewandowski C, Thomson A, Zhang Y, Polski R, Watanabe K, Taniguchi T, Alicea J, Nadj-Perge S 2021 arXiv: 2109.12127 [cond-mat.mes-hall]
- [74] Cao Y, Park J M, Watanabe K, Taniguchi T, Jarillo-Herrero P 2021 *Nature* **595** 526
- [75] Park J M, Cao Y, Watanabe K, Taniguchi T, Jarillo-Herrero P 2021 *Nature* **590** 249
- [76] Liu X, Zhang N J, Watanabe K, Taniguchi T, Li J I A 2022 *Nat. Phys.* **18** 522
- [77] Sun X, Zhang S, Liu Z, Zhu H, Huang J, Yuan K, Wang Z, Watanabe K, Taniguchi T, Li X, Zhu M, Mao J, Yang T, Kang J, Liu J, Ye Y, Han Z V, Zhang Z 2021 *Nat. Commun.* **12** 7196
- [78] Chen G, Jiang L, Wu S, Lyu B, Li H, Chittari B L, Watanabe K, Taniguchi T, Shi Z, Jung J, Zhang Y, Wang F 2019 *Nat. Phys.* **15** 237
- [79] Chen G, Sharpe A L, Fox E J, et al. 2020 *Nature* **579** 56
- [80] Xie B, Peng R, Zhang S, Liu J 2022 *npj Comput. Mater.* **8** 1
- [81] Peng R, Liu J 2022 *Phys. Rev. Res.* **4** L032006
- [82] Zhang S, Lu X, Liu J 2022 *Phys. Rev. Lett.* **128** 247402
- [83] Zhang S, Dai X, Liu J 2022 *Phys. Rev. Lett.* **128** 026403
- [84] Liu L, Zhang S, Chu Y, Shen C, Huang Y, Yuan Y, Tian J, Tang J, Ji Y, Yang R, Watanabe K, Taniguchi T, Shi D, Liu J, Yang W, Zhang G 2022 *Nat. Commun.* **13** 3292
- [85] Liu X, Peng R, Sun Z, Liu J 2022 *Nano Lett.* **22** 7791
- [86] Lu X, Zhang S, Gao X, Yang K, Gao Y, Ye Y, Han Z V, Liu J 2022 arXiv: 2206.05659 [cond-mat.mes-hall]
- [87] Wang Y, Gao X, Yang K, Gu P, Lu X, Zhang S, Gao Y, Ren N, Dong B, Jiang Y, Watanabe K, Taniguchi T, Kang J, Lou W, Mao J, Liu J, Ye Y, Han Z, Chang K, Zhang J, Zhang Z 2022 *Nat. Nanotechnol.* **17** 1272
- [88] Lopes dos Santos J M B, Peres N M R, Castro Neto A H 2012 *Phys. Rev. B* **86** 155449
- [89] Koshino M, Yuan N F Q, Koretsune T, Ochi M, Kuroki K, Fu L 2018 *Phys. Rev. X* **8** 031087
- [90] He M, Li Y, Cai J, Liu Y, Watanabe K, Taniguchi T, Xu X, Yankowitz M 2021 *Nat. Phys.* **17** 26
- [91] Yuan N F Q, Fu L 2018 *Phys. Rev. B* **98** 045103
- [92] Liu J P, Dai X 2020 *Acta Phys. Sin.* **69** 147301 (in Chinese) [刘健鹏, 戴希 2020 物理学报 **69** 147301]
- [93] Liu J, Dai X 2021 *Phys. Rev. B* **103** 035427
- [94] Zhu J, Su J J, MacDonald A H 2020 *Phys. Rev. Lett.* **125** 227702
- [95] Li S Y, Zhang Y, Ren Y N, Liu J, Dai X, He L 2020 *Phys.*

- Rev. B* **102** 121406
- [96] He W Y, Goldhaber-Gordon D, Law K T 2020 *Nat. Commun.* **11** 1650
- [97] Su Y, Lin S Z 2020 *Phys. Rev. Lett.* **125** 226401
- [98] Huang C, Wei N, MacDonald A H 2021 *Phys. Rev. Lett.* **126** 056801
- [99] Ying X, Ye M, Balents L 2021 *Phys. Rev. B* **103** 115436
- [100] Min H, MacDonald A H 2008 *Prog. Theor. Phys. Suppl.* **176** 227
- [101] Xie F, Regnault N, Călugăru D, Bernevig B A, Lian B 2021 *Phys. Rev. B* **104** 115167
- [102] Bouhon A, Black-Schaffer A M, Slager R J 2019 *Phys. Rev. B* **100** 195135
- [103] Zhang Y H, Mao D, Senthil T 2019 *Phys. Rev. Res.* **1** 033126
- [104] Bultinck N, Chatterjee S, Zaletel M P 2020 *Phys. Rev. Lett.* **124** 166601
- [105] King-Smith R, Vanderbilt D 1993 *Phys. Rev. B* **47** 1651
- [106] Rabe K M, Ahn C H, Triscone J M 2007 *Physics of Ferroelectrics: a Modern Perspective* (Berlin: Springer-Verlag) pp31–68
- [107] Pereira V M, Castro Neto A H 2009 *Phys. Rev. Lett.* **103** 046801
- [108] Yu J, Liu C 2020 *Nat. Commun.* **11** 2290
- [109] Moon P, Koshino M 2014 *Phys. Rev. B* **90** 155406
- [110] Jung J, Raoux A, Qiao Z, MacDonald A H 2014 *Phys. Rev. B* **89** 205414
- [111] Nam N N T, Koshino M 2017 *Phys. Rev. B* **96** 075311
- [112] Gupta R, Rost F, Fleischmann M, Sharma S, Shallcross S 2019 *Phys. Rev. B* **99** 125407
- [113] Bultinck N, Khalaf E, Liu S, Chatterjee S, Vishwanath A, Zaletel M P 2020 *Phys. Rev. X* **10** 031034
- [114] Zhang Y, Jiang K, Wang Z, Zhang F 2020 *Phys. Rev. B* **102** 035136
- [115] Lian B, Song Z D, Regnault N, Efetov D K, Yazdani A, Bernevig B A 2021 *Phys. Rev. B* **103** 205414
- [116] Bernevig B A, Song Z D, Regnault N, Lian B 2021 *Phys. Rev. B* **103** 205413
- [117] Kwan Y H, Wagner G, Soejima T, Zaletel M P, Simon S H, Parameswaran S A, Bultinck N 2021 *Phys. Rev. X* **11** 041063
- [118] Wagner G, Kwan Y H, Bultinck N, Simon S H, Parameswaran S A 2022 *Phys. Rev. Lett.* **128** 156401
- [119] Kang J, Vafek O 2019 *Phys. Rev. Lett.* **122** 246401
- [120] Po H C, Zou L, Vishwanath A, Senthil T 2018 *Phys. Rev. X* **8** 031089
- [121] Rademaker L, Mellado P 2018 *Phys. Rev. B* **98** 235158
- [122] Kang J, Vafek O 2018 *Phys. Rev. X* **8** 031088
- [123] Xu X Y, Law K T, Lee P A 2018 *Phys. Rev. B* **98** 121406
- [124] Huang T, Zhang L, Ma T 2019 *Sci. Bull.* **64** 310
- [125] Liu C C, Zhang L D, Chen W Q, Yang F 2018 *Phys. Rev. Lett.* **121** 217001
- [126] Venderbos J W F, Fernandes R M 2018 *Phys. Rev. B* **98** 245103
- [127] Lu C, Zhang Y, Zhang Y, Zhang M, Liu C C, Wang Y, Gu Z C, Chen W Q, Yang F 2022 *Phys. Rev. B* **106** 024518
- [128] Da Liao Y, Kang J, Breið C N, Xu X Y, Wu H Q, Andersen B M, Fernandes R M, Meng Z Y 2021 *Phys. Rev. X* **11** 011014
- [129] Seo K, Kotov V N, Uchoa B 2019 *Phys. Rev. Lett.* **122** 246402
- [130] Isobe H, Yuan N F Q, Fu L 2018 *Phys. Rev. X* **8** 041041
- [131] Chichinadze D V, Classen L, Chubukov A V 2020 *Phys. Rev. B* **102** 125120
- [132] Hejazi K, Chen X, Balents L 2021 *Phys. Rev. Res.* **3** 013242
- [133] Xie M, MacDonald A H 2020 *Phys. Rev. Lett.* **124** 097601
- [134] Liu S, Khalaf E, Lee J Y, Vishwanath A 2021 *Phys. Rev. Res.* **3** 013033
- [135] Kang J, Vafek O 2020 *Phys. Rev. B* **102** 035161
- [136] Soejima T, Parker D E, Bultinck N, Hauschild J, Zaletel M P 2020 *Phys. Rev. B* **102** 205111
- [137] Chen B B, Liao Y D, Chen Z, Vafek O, Kang J, Li W, Meng Z Y 2021 *Nat. Commun.* **12** 5480
- [138] Lin X, Chen B B, Li W, Meng Z Y, Shi T 2022 *Phys. Rev. Lett.* **128** 157201
- [139] Zhang X, Pan G, Zhang Y, Kang J, Meng Z Y 2021 *Chin. Phys. Lett.* **38** 077305
- [140] Hofmann J S, Khalaf E, Vishwanath A, Berg E, Lee J Y 2022 *Phys. Rev. X* **12** 011061
- [141] Pan G, Zhang X, Lu H, Li H, Chen B B, Sun K, Meng Z Y 2023 *Phys. Rev. Lett.* **130** 016401
- [142] Xie F, Cowsik A, Song Z D, Lian B, Bernevig B A, Regnault N 2021 *Phys. Rev. B* **103** 205416
- [143] Potasz P, Xie M, MacDonald A H 2021 *Phys. Rev. Lett.* **127** 147203
- [144] Parker D E, Soejima T, Hauschild J, Zaletel M P, Bultinck N 2021 *Phys. Rev. Lett.* **127** 027601
- [145] Shi H, Dai X 2022 *Phys. Rev. B* **106** 245129
- [146] Hejazi K, Liu C, Shapourian H, Chen X, Balents L 2019 *Phys. Rev. B* **99** 035111
- [147] Song Z D, Bernevig B A 2022 *Phys. Rev. Lett.* **129** 047601
- [148] Kang J, Bernevig B A, Vafek O 2021 *Phys. Rev. Lett.* **127** 266402
- [149] Vanhala T I, Pollet L 2020 *Phys. Rev. B* **102** 035154
- [150] Wong D, Nuckolls K P, Oh M, Lian B, Xie Y, Jeon S, Watanabe K, Taniguchi T, Bernevig B A, Yazdani A 2020 *Nature* **582** 198
- [151] Zondiner U, Rozen A, Rodan-Legrain D, Cao Y, Queiroz R, Taniguchi T, Watanabe K, Oreg Y, von Oppen F, Stern A, Berg E, Jarillo-Herrero P, Ilani S 2020 *Nature* **582** 203
- [152] Xie F, Kang J, Bernevig B A, Vafek O, Regnault N 2023 *Phys. Rev. B* **107** 075156
- [153] Polshyn H, Zhang Y, Kumar M A, Soejima T, Ledwith P, Watanabe K, Taniguchi T, Vishwanath A, Zaletel M P, Young A F 2022 *Nat. Phys.* **18** 42
- [154] Padhi B, Setty C, Phillips P W 2018 *Nano Lett.* **18** 6175
- [155] Zhang K, Zhang Y, Fu L, Kim E A 2022 *Commun. Phys.* **5** 250
- [156] Parker D, Ledwith P, Khalaf E, Soejima T, Hauschild J, Xie Y, Pierce A, Zaletel M P, Yacoby A, Vishwanath A 2021 [arXiv:2112.13837](https://arxiv.org/abs/2112.13837) [cond-mat.str-el]
- [157] Liu J, Dai X 2020 *npj Comput. Mater.* **6** 57
- [158] Yang F, Song W, Meng F, Luo F, Lou S, Lin S, Gong Z, Cao J, Barnard E S, Chan E, Yang L, Yao J 2020 *Matter* **3** 1361
- [159] Torre A d l, Seyler K L, Zhao L, Matteo S D, Scheurer M S, Li Y, Yu B, Greven M, Sachdev S, Norman M R, Hsieh D 2021 *Nat. Phys.* **17** 777
- [160] Zhao L, Torchinsky D H, Chu H, Ivanov V, Lifshitz R, Flint R, Qi T, Cao G, Hsieh D 2016 *Nat. Phys.* **12** 32
- [161] Hong J P, Soejima T, Zaletel M P 2022 *Phys. Rev. Lett.* **129** 147001
- [162] Călugăru D, Regnault N, Oh M, Nuckolls K P, Wong D, Lee R L, Yazdani A, Vafek O, Bernevig B A 2022 *Phys. Rev. Lett.* **129** 117602
- [163] Rademaker L, Protopopov I V, Abanin D A 2020 *Phys. Rev.*

- Res.* 2 033150
- [164] Hofstadter D R 1976 *Phys. Rev. B* **14** 2239
- [165] Song Z, Sun S, Xu Y, Nie S, Weng H, Fang Z, Dai X 2022 *Memorial Volume for Shoucheng Zhang* (Singapore: World Scientific) pp263–281
- [166] Koshino M 2011 *Phys. Rev. B* **84** 125427
- [167] Wu Q, Liu J, Guan Y, Yazyev O V 2021 *Phys. Rev. Lett.* **126** 056401
- [168] Sun S, Song Z, Weng H, Dai X 2020 *Phys. Rev. B* **101** 125118
- [169] Streda P 1982 *J. Phys. C: Solid State Phys.* **15** L717
- [170] Xiao D, Shi J, Niu Q 2005 *Phys. Rev. Lett.* **95** 137204
- [171] Polshyn H, Yankowitz M, Chen S, Zhang Y, Watanabe K, Taniguchi T, Dean C R, Young A F 2019 *Nat. Phys.* **15** 1011
- [172] Cao Y, Chowdhury D, Rodan-Legrain D, Rubies-Bigorda O, Watanabe K, Taniguchi T, Senthil T, Jarillo-Herrero P 2020 *Phys. Rev. Lett.* **124** 076801
- [173] Wu F, MacDonald A H, Martin I 2018 *Phys. Rev. Lett.* **121** 257001
- [174] Lian B, Wang Z, Bernevig B A 2019 *Phys. Rev. Lett.* **122** 257002
- [175] Wu F, Hwang E, Das Sarma S 2019 *Phys. Rev. B* **99** 165112
- [176] Lamparski M, Troeye B V, Meunier V 2020 *2D Mater.* **7** 025050
- [177] Sharma G, Yudhistira I, Chakraborty N, Ho D Y H, Ezzi M M A, Fuhrer M S, Vignale G, Adam S 2021 *Nat. Commun.* **12** 5737
- [178] Cocemasov A I, Nika D L, Balandin A A 2013 *Phys. Rev. B* **88** 035428
- [179] Choi Y W, Choi H J 2018 *Phys. Rev. B* **98** 241412
- [180] Angeli M, Tosatti E, Fabrizio M 2019 *Phys. Rev. X* **9** 041010
- [181] Eliel G S N, Moutinho M V O, Gadelha A C, Righi A, Campos L C, Ribeiro H B, Chiu P W, Watanabe K, Taniguchi T, Puech P, Paillet M, Michel T, Venezuela P, Pimenta M A 2018 *Nat. Commun.* **9** 1221
- [182] Koshino M, Son Y W 2019 *Phys. Rev. B* **100** 075416
- [183] Koshino M, Nam N N T 2020 *Phys. Rev. B* **101** 195425
- [184] Choi Y W, Choi H J 2021 *Phys. Rev. Lett.* **127** 167001
- [185] Zhang L, Han J, Wang H, Car R, E W 2018 *Phys. Rev. Lett.* **120** 143001
- [186] Miao W, Li C, Pan D, Dai X 2022 arXiv: 2210.02026 [cond-mat.mes-hall]
- [187] Wigner E 1934 *Phys. Rev.* **46** 1002
- [188] Andrei E Y, Deville G, Glatli D C, Williams F I B, Paris E, Etienne B 1988 *Phys. Rev. Lett.* **60** 2765
- [189] Li H, Li S, Regan E C, Wang D, Zhao W, Kahn S, Yumigeta K, Blei M, Taniguchi T, Watanabe K, Tongay S, Zettl A, Crommie M F, Wang F 2021 *Nature* **597** 650
- [190] Altvater M A, Hung S H, Tilak N, Won C J, Li G, Cheong S W, Chung C H, Jeng H T, Andrei E Y 2022 arXiv: 2201.09195 [cond-mat.mes-hall]
- [191] Tseng C C, Song T, Jiang Q, Lin Z, Wang C, Suh J, Watanabe K, Taniguchi T, McGuire M A, Xiao D, Chu J H, Cobden D H, Xu X, Yankowitz M 2022 *Nano Lett.* **22** 8495
- [192] Drummond N D, Needs R J 2009 *Phys. Rev. Lett.* **102** 126402
- [193] Gamayun O V, Gorbar E V, Gusynin V P 2010 *Phys. Rev. B* **81** 075429
- [194] Guinea F, Katsnelson M I, Geim A K 2010 *Nat. Phys.* **6** 30
- [195] Herzog-Arbeitman J, Song Z D, Regnault N, Bernevig B A 2020 *Phys. Rev. Lett.* **125** 236804
- [196] Wu F, Das Sarma S 2020 *Phys. Rev. Lett.* **124** 046403
- [197] Bernevig B A, Lian B, Cowsik A, Xie F, Regnault N, Song Z D 2021 *Phys. Rev. B* **103** 205415
- [198] Khalaf E, Bultinck N, Vishwanath A, Zaletel M P 2020 arXiv: 2009.14827 [cond-mat.mes-hall]
- [199] Vafek O, Kang J 2020 *Phys. Rev. Lett.* **125** 257602
- [200] Chen G, Sharpe A L, Gallagher P, Rosen I T, Fox E J, Jiang L, Lyu B, Li H, Watanabe K, Taniguchi T, Jung J, Shi Z, Goldhaber-Gordon D, Zhang Y, Wang F 2019 *Nature* **572** 215
- [201] Xu C, Balents L 2018 *Phys. Rev. Lett.* **121** 087001
- [202] Wu F 2019 *Phys. Rev. B* **99** 195114
- [203] Qin W, MacDonald A H 2021 *Phys. Rev. Lett.* **127** 097001
- [204] Hsu Y T, Wu F, Das Sarma S 2020 *Phys. Rev. B* **102** 085103
- [205] Khalaf E, Chatterjee S, Bultinck N, Zaletel M P, Vishwanath A 2021 *Sci. Adv.* **7** eabf5299
- [206] Yu J, Xie M, Bernevig B A, Sarma S D 2023 arXiv: 2301.04171 [cond-mat.mes-hall]
- [207] Tran K, Moody G, Wu F, et al. 2019 *Nature* **567** 71
- [208] Seyler K L, Rivera P, Yu H, Wilson N P, Ray E L, Mandrus D G, Yan J, Yao W, Xu X 2019 *Nature* **567** 66
- [209] Jin C, Regan E C, Yan A, Iqbal Bakti Utama M, Wang D, Zhao S, Qin Y, Yang S, Zheng Z, Shi S, Watanabe K, Taniguchi T, Tongay S, Zettl A, Wang F 2019 *Nature* **567** 76
- [210] Alexeev E M, Ruiz-Tijerina D A, Danovich M, et al. 2019 *Nature* **567** 81
- [211] Wang L, Shih E M, Ghiotto A, Xian L, Rhodes D A, Tan C, Claassen M, Kennes D M, Bai Y, Kim B, Watanabe K, Taniguchi T, Zhu X, Hone J, Rubio A, Pasupathy A N, Dean C R 2020 *Nat. Mater.* **19** 861
- [212] Regan E C, Wang D, Jin C, Bakti Utama M I, Gao B, Wei X, Zhao S, Zhao W, Zhang Z, Yumigeta K, Blei M, Carlström J D, Watanabe K, Taniguchi T, Tongay S, Crommie M, Zettl A, Wang F 2020 *Nature* **579** 359
- [213] Tang Y, Li L, Li T, Xu Y, Liu S, Barmak K, Watanabe K, Taniguchi T, MacDonald A H, Shan J, Mak K F 2020 *Nature* **579** 353
- [214] Li T, Jiang S, Shen B, Zhang Y, Li L, Tao Z, Devakul T, Watanabe K, Taniguchi T, Fu L, Shan J, Mak K F 2021 *Nature* **600** 641
- [215] Huang M, Wu Z, Hu J, Cai X, Li E, An L, Feng X, Ye Z, Lin N, Law K T, Wang N 2022 *National Sci. Rev.* DOI: 10.1093/nsr/nwac232
- [216] Tong Q, Yu H, Zhu Q, Wang Y, Xu X, Yao W 2017 *Nat. Phys.* **13** 356
- [217] Wu F, Lovorn T, Tutuc E, MacDonald A H 2018 *Phys. Rev. Lett.* **121** 026402
- [218] Wu F, Lovorn T, Tutuc E, Martin I, MacDonald A H 2019 *Phys. Rev. Lett.* **122** 086402
- [219] Pan H, Xie M, Wu F, Das Sarma S 2022 *Phys. Rev. Lett.* **129** 056804
- [220] Xu Y, Ray A, Shao Y T, Jiang S, Lee K, Weber D, Goldberger J E, Watanabe K, Taniguchi T, Muller D A, Mak K F, Shan J 2022 *Nat. Nanotechnol.* **17** 143
- [221] Song T, Sun Q C, Anderson E, et al. 2021 *Science* **374** 1140
- [222] Xiao F, Chen K, Tong Q 2021 *Phys. Rev. Res.* **3** 013027
- [223] Tong Q, Liu F, Xiao J, Yao W 2018 *Nano Lett.* **18** 7194
- [224] Hu J X, Zhang C P, Xie Y M, Law K T 2022 *Commun. Phys.* **5** 255
- [225] Tao Z, Shen B, Jiang S, Li T, Li L, Ma L, Zhao W, Hu J, Pistunova K, Watanabe K, Taniguchi T, Heinz T F, Mak K F, Shan J 2022 arXiv: 2208.07452 [cond-mat.mes-hall]

SPECIAL TOPIC—Two dimensional twisted moiré superlattice

Novel electrical properties of moiré graphene systems*

Zhang Shi-Hao¹⁾ Xie Bo¹⁾ Peng Ran¹⁾ Liu Xiao-Qian¹⁾Lü Xin¹⁾ Liu Jian-Peng^{1)2)†}1) (*School of Physical Science and Technology, ShanghaiTech University, Shanghai 201210, China*)2) (*Laboratory for Topological Physics, ShanghaiTech University, Shanghai 201210, China*)

(Received 30 January 2023; revised manuscript received 13 March 2023)

Abstract

In this review, we discuss the electronic structures, topological properties, correlated states, nonlinear optical responses, as well as phonon and electron-phonon coupling effects of moiré graphene superlattices. First, we illustrate that topologically non-trivial flat bands and moiré orbital magnetism are ubiquitous in various twisted graphene systems. In particular, the topological flat bands of magic-angle twisted bilayer graphene can be explained from a zeroth pseudo-Landau-level picture, which can naturally explain the experimentally observed quantum anomalous Hall effect and some of the other correlated states. These topologically nontrivial flat bands may lead to nearly quantized piezoelectric response, which can be used to directly probe the valley Chern numbers in these moiré graphene systems. A simple and general chiral decomposition rule is reviewed and discussed, which can be used to predict the low-energy band dispersions of generic twisted multilayer graphene system and alternating twisted multilayer graphene system. This review further discusses nontrivial interaction effects of magic-angle TBG such as the correlated insulator states, density wave states, cascade transitions, and nematic states, and proposes nonlinear optical measurement as an experimental probe to distinguish the different “featureless” correlated states. The phonon properties and electron-phonon coupling effects are also briefly reviewed. The novel physics emerging from band-aligned graphene-insulator heterostructures is also discussed in this review. In the end, we make a summary and an outlook about the novel physical properties of moiré superlattices based on two-dimensional materials.

Keywords: moiré graphene heterostructures, topological physics, correlated states, moiré phonons, piezoelectric effects, nonlinear optical effects

PACS: 73.22.Pr, 73.21.Cd, 73.22.Gk, 74.78.Fk

DOI: [10.7498/aps.72.20230120](https://doi.org/10.7498/aps.72.20230120)

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 12174257), the National Key R&D Program of China (Grant No. 2020YFA0309601), and the Start-up Grant of ShanghaiTech University, China.

† Corresponding author. E-mail: liujp@shanghaitech.edu.cn



莫尔石墨烯体系的新奇电学性质

张世豪 解博 彭然 刘晓迁 吕昕 刘健鹏

Novel electrical properties of moiré graphene systems

Zhang Shi-Hao Xie Bo Peng Ran Liu Xiao-Qian Lü Xin Liu Jian-Peng

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 72, 067302 (2023) DOI: 10.7498/aps.72.20230120

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.72.20230120>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

石墨烯莫尔超晶格体系的拓扑性质及光学研究进展

Topological properties of graphene moiré superlattice systems and recent optical studies

物理学报. 2019, 68(22): 220303 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20191317>

从“魔角”石墨烯到摩尔超晶格量子模拟器

From magic angle twisted bilayer graphene to moiré superlattice quantum simulator

物理学报. 2021, 70(11): 118101 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210476>

转角石墨烯体系的拓扑特性和轨道磁性

Topological properties and orbital magnetism in twisted graphene systems

物理学报. 2020, 69(14): 147301 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200506>

石墨烯莫尔超晶格的晶格弛豫与衬底效应

Lattice relaxation and substrate effects of graphene moiré superlattice

物理学报. 2022, 71(18): 187302 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220872>

磁性斯格明子的研究现状和展望

Overview and outlook of magnetic skyrmions

物理学报. 2018, 67(13): 131201 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180619>

Ru(0001)上的9,9'-二亚吨分子吸附行为和石墨烯摩尔超结构

Adsorption behavior of 9,9'-Dixanthylidene and moiré superstructure on Ru(0001)

物理学报. 2022, 71(21): 216801 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20221057>