

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隙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

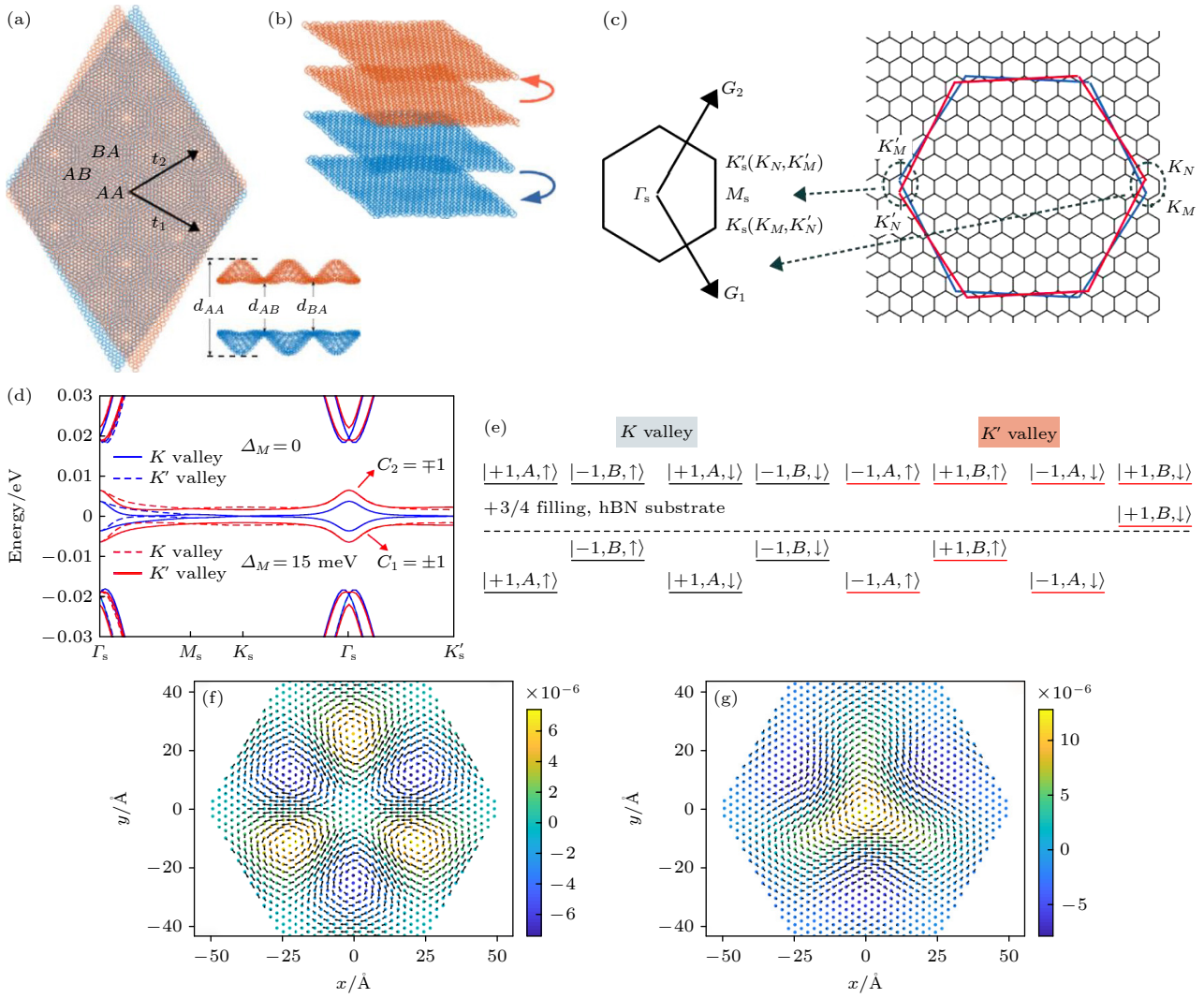


图 1 (a) 转角双层石墨烯和 (b) 转角双层-双层石墨烯体系的莫尔晶格结构的图示. (c) 转角石墨烯体系的布里渊区, 其中红色和蓝色六角分别代表底部多层石墨烯和顶部多层石墨烯的布里渊区, 而小黑六角代表着转角石墨烯超晶格的莫尔布里渊区. (d) 魔角双层石墨烯的能带. (e) 魔角双层石墨烯平带朗道能级表示的示意图^[37,45]. (f), (g) 魔角双层石墨烯 K 谷平带贡献的实空间电流密度分布^[37], 子晶格势能分别为 (f) $\Delta_M = 0$ meV 和 (g) $\Delta_M = 15$ meV

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]

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

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)

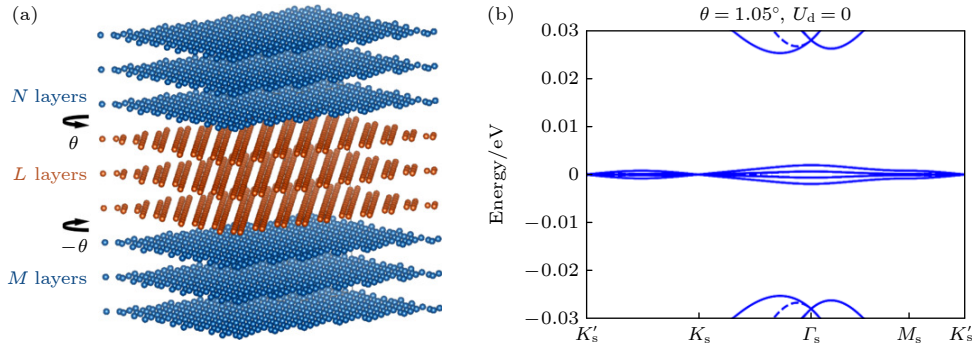


图 2 (a) 交错转角多层石墨烯体系的晶格结构示意图; (b) 手性近似下 A - ABA - A 体系的能带^[56], 存在两套平带, 其中实线为 K 能谷的能带, 虚线为 K' 能谷的能带

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, 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

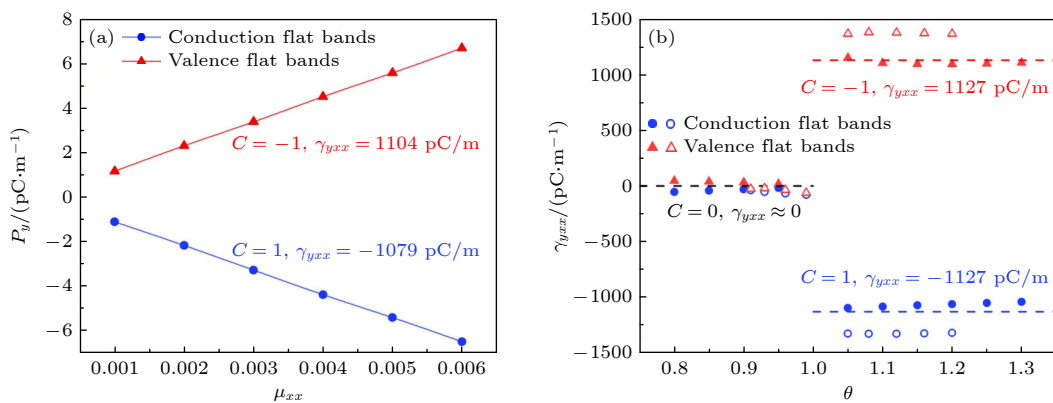


图 3 (a) 两层都与 hBN 对齐的魔角双层石墨烯 y 方向电极化关于应变分量 u_{xx} 的变化^[81]; (b) 由价带平带 (红色三角) 和导带平带 (蓝色圆点) 贡献的压电响应 γ_{yxx} 关于转角 θ 的变化^[81], 其中实心点代表连续模型的结果, 空心点代表紧束缚模型的结果, 而水平虚线代表理想的量子化值

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].

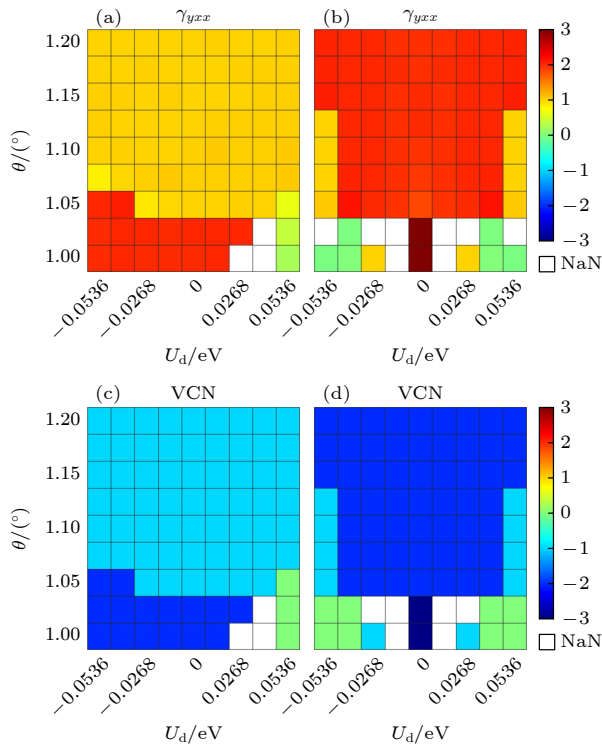


图4 A - AB 堆叠转角单层-双层石墨烯的(a)压电响应和(c)谷陈数, 以及 AB - BA 堆叠双层-双层转角石墨烯的(b)压电响应和(d)谷陈数^[81]. 这里 U_d 为位移电场. 在图(a)和(b)中, γ_{yx} 的值显示为 $|4\gamma_{yx}^0| = 1127 \text{ pC/m}$ 的倍数. 空白格子代表过于接近拓扑相变而无法准确计算压电响应和陈数的区域

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($W \sim 5-10 \text{ meV}$), 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

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

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

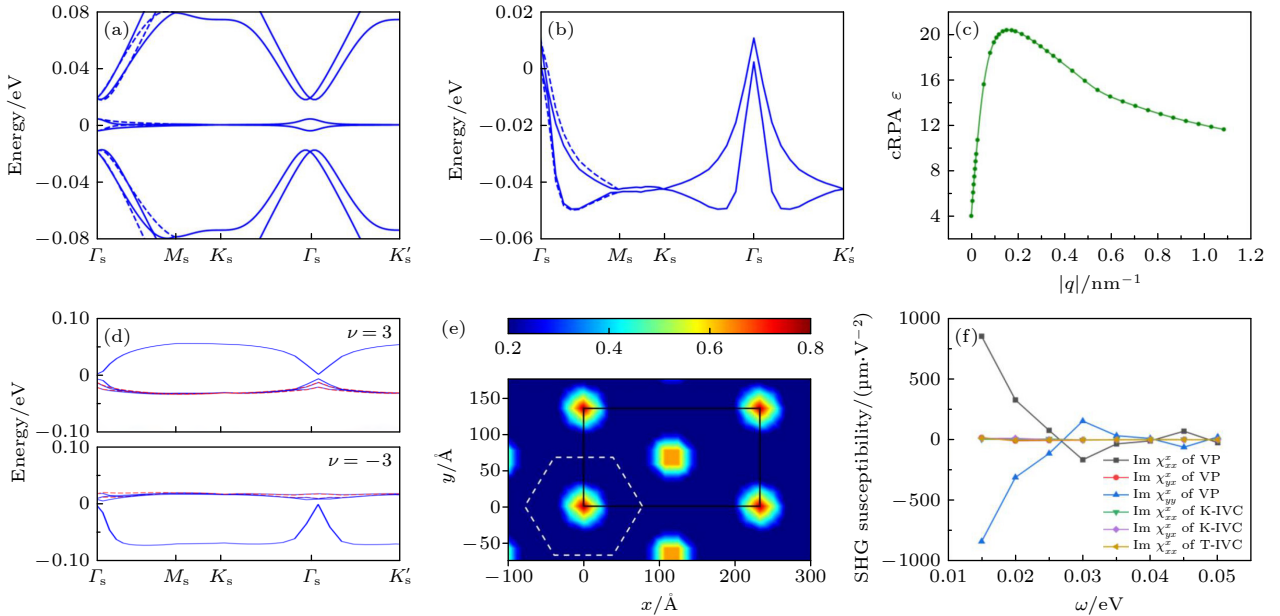


图 5 (a) 魔角双层石墨烯的非相互作用能带; (b) 包含高能子空间库仑势能效应的平带色散 [82]; (c) 考虑库仑屏蔽效应后介电常数随波矢的变化 [82]; (d) 上图为 $\nu = 3$ 填充处的相互作用单粒子能谱, 下图为 $\nu = -3$ 填充处的相互作用单粒子能谱 [82]; (e) $\nu = 1$ 时密度波态的实空间电荷分布 [82]; (f) 不同自发对称性破缺态下的非线性光学响应 [82]

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

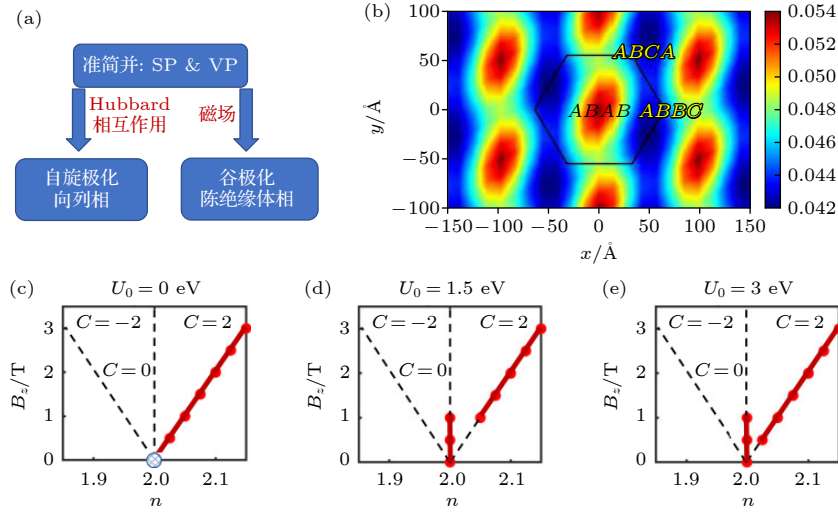


图 6 (a) 转角多层石墨烯体系在半填充时自旋极化和谷极化态的竞争关系。“SP”和“VP”分别代表自旋极化态和谷极化态；(b) 转角双层-双层石墨烯半填充处的实空间电荷分布^[83]；(c)–(e) 转角双层-单层石墨烯体系在不同 Hubbard 参数和磁场下衍生出的不同陈数的绝缘态，用红线标记^[83]

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]。

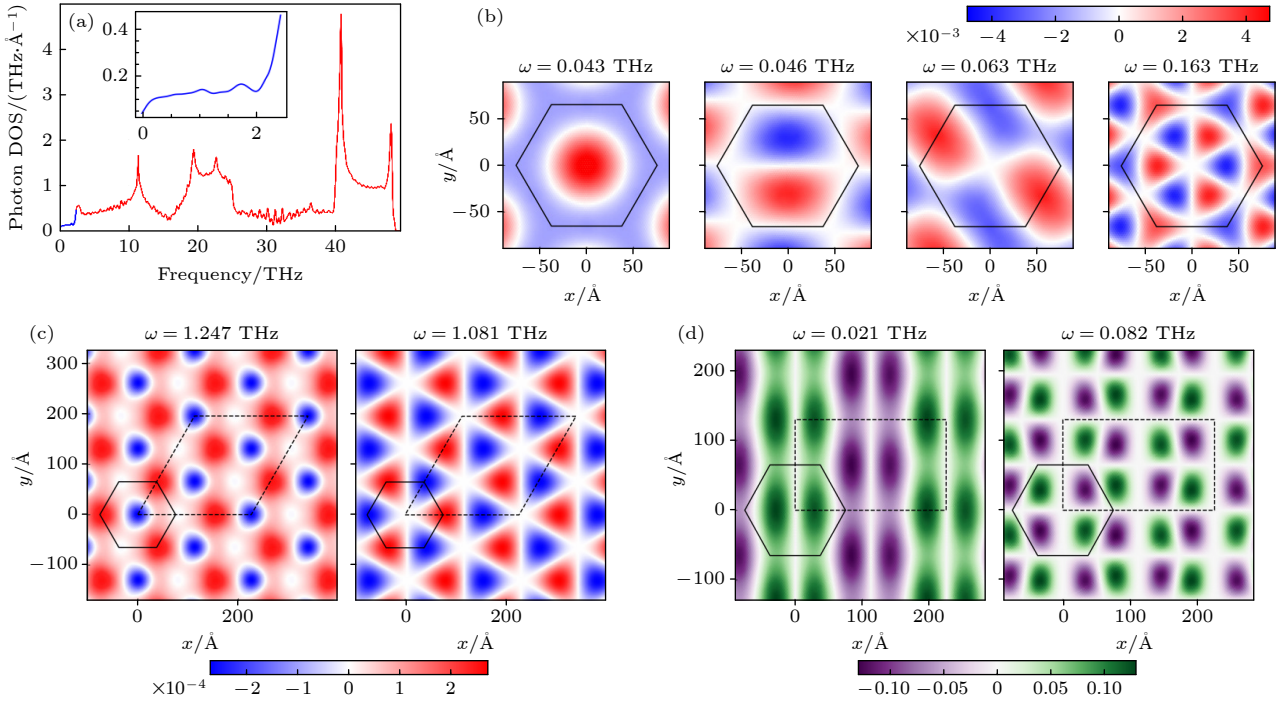


图 7 (a) 魔角双层石墨烯的声子态密度, 蓝色线条为 0—2.4 THz 的低频声子的声子态密度^[85]; (b) 魔角双层石墨烯在 Γ 点的声子软模, 莫尔原胞用黑色六边形标注出^[85]; (c) 魔角双层石墨烯在 K 点的声子极化, 其中 $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ 超胞用黑色虚线标注^[85]; (d) 魔角双层石墨烯在 M 点的声子模, 双倍莫尔超胞用黑色虚线标注^[85]

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.

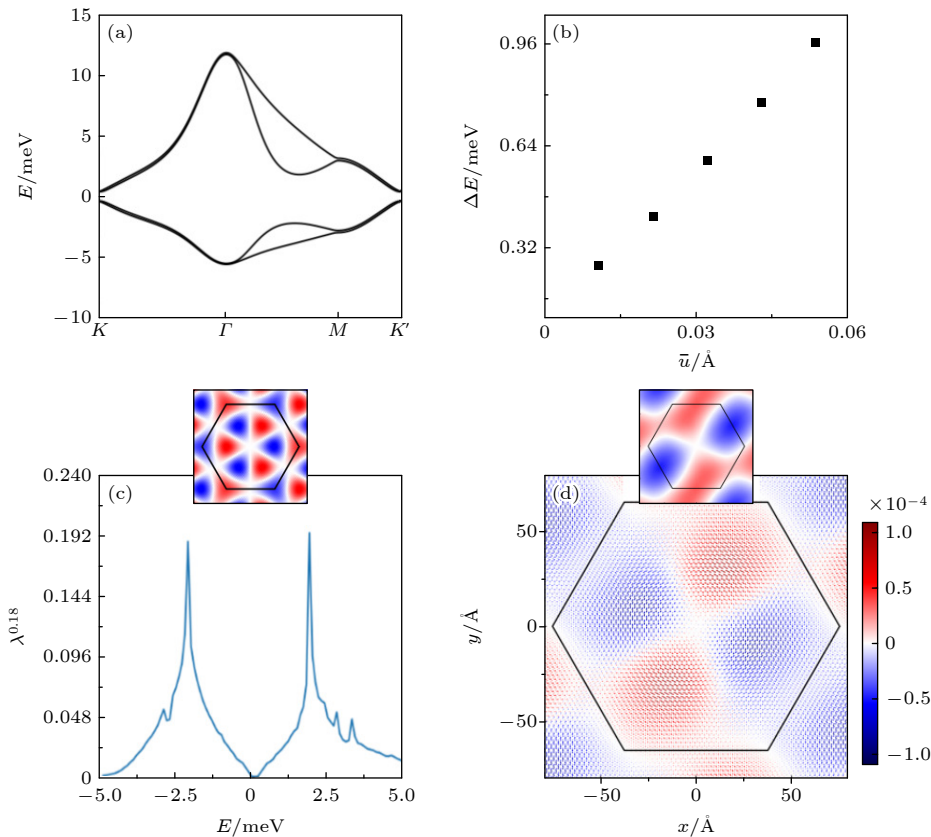


图 8 (a) 八极矩声子模式被冻结后在魔角双层石墨烯电中性点打开能隙^[85] (b) 能带间隙随声子振幅线性增加^[85]. (c) 魔角双层石墨烯中八极矩声子的电声耦合强度随费米能级的变化^[85]; (d) 四极矩声子被冻结后产生四极矩的电荷序^[85]

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-TaS₂, CrI₃ 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 YI₃, ReSe₂ 和 WS₂ 等, 来作为石墨烯的绝缘衬底实现上述物理图像.

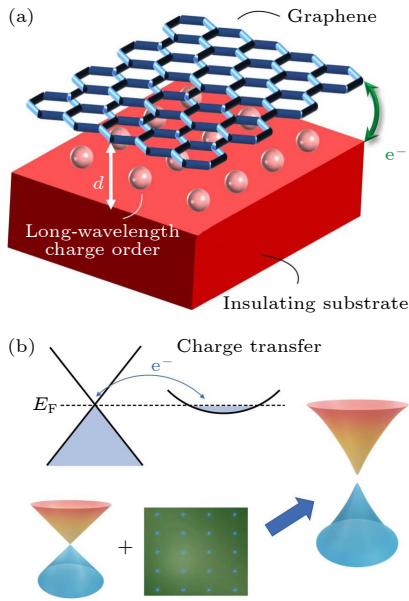


图 9 (a) 单层石墨烯与绝缘衬底上的长程电荷序耦合; (b) 电子转移从石墨烯转移到衬底中形成的长程电荷序产生超晶格势场反作用于石墨烯的电子上, 进而在电子间相互作用的驱动下, 在狄拉克点打开能隙并大大增强在其附近的费米速度^[86]

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].

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

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

* 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>