

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

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  $^3\text{He}$  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<sup>[1-3]</sup>(TBG), 六角氮化硼-石墨烯<sup>[4-6]</sup>, 转角过渡金属硫化物 (tTMDs)<sup>[7,8]</sup> 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<sup>[2]</sup>、超导态<sup>[3]</sup>、量子反常霍尔效应 (QAHE)<sup>[9]</sup> 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)<sup>[10]</sup>. 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<sup>[11]</sup>, 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<sup>[12]</sup>、哈佛大学的 Kim 团队<sup>[13]</sup> 以及麻省理工大学的 Jarillo-Herrero 团队<sup>[14]</sup> 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<sup>[15]</sup>, 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<sup>[16]</sup>. 2022 年, 张广宇团队<sup>[17]</sup> 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  $C$ <sup>[18]</sup>. 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

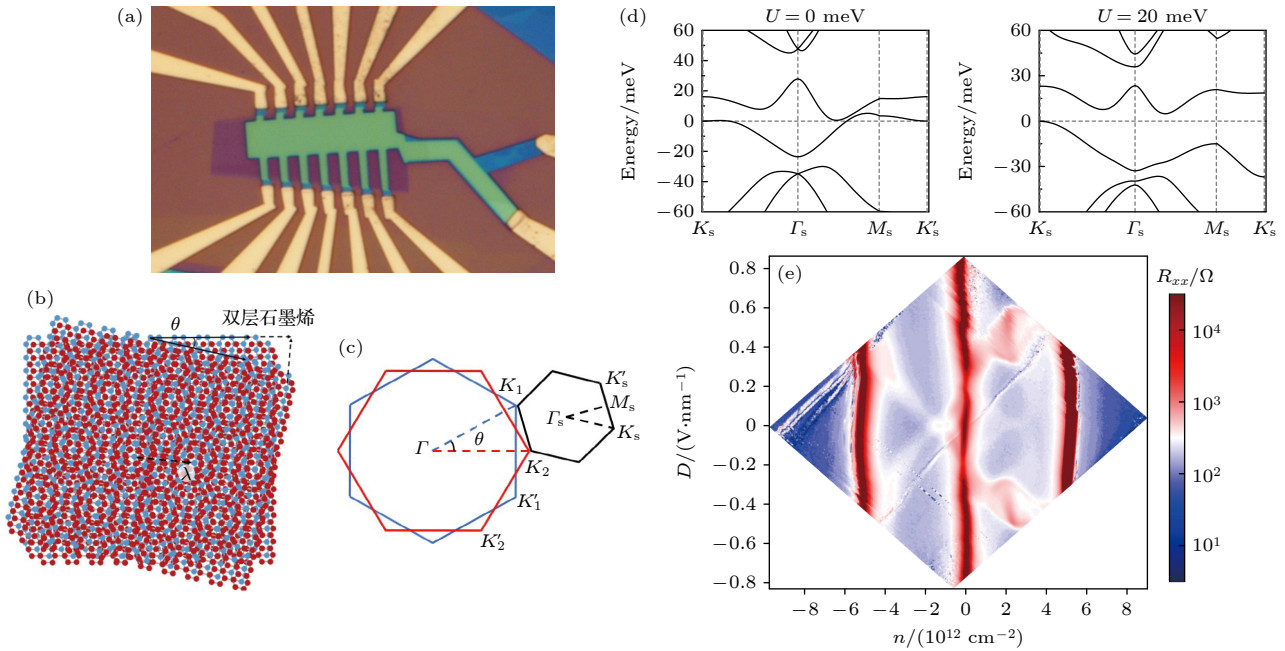


图 1 TDBG 器件的电输运测量 (a) 转角为 1.48° 的 TDBG 器件光学图; (b) 转角为  $\theta$  的 TDBG 示意图; (c) 转角为  $\theta$  的迷你布里渊区的示意图; (d) 不同电势能作用下 ( $U = 0$  meV,  $U = 20$  meV) TDBG 的能带图; (e)  $T = 2$  K 时, 纵向电阻  $R_{xx}$  随载流子浓度  $n$  和电位移场  $D$  变化

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  $\theta$ ; (c) schematic of mini Brillouin zone with a twist angle  $\theta$ ; (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/SiO<sub>2</sub> 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<sup>[19]</sup>的双层石墨烯与 h-BN 材料, 并且采用撕裂继而堆叠<sup>[20,21]</sup>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<sup>[21]</sup>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  $\theta$ , 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<sup>[11]</sup> 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  $\nu$  ( $\nu = 4n/n_s$ ,  $n_s$  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  $\theta$  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  $\theta$  很小时,  $\theta$  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<sup>[11]</sup>, 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  $\Gamma_s$  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<sup>[22,23]</sup>.

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  $\nu$  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  $\nu$  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<sup>[24]</sup>;  $s$  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,

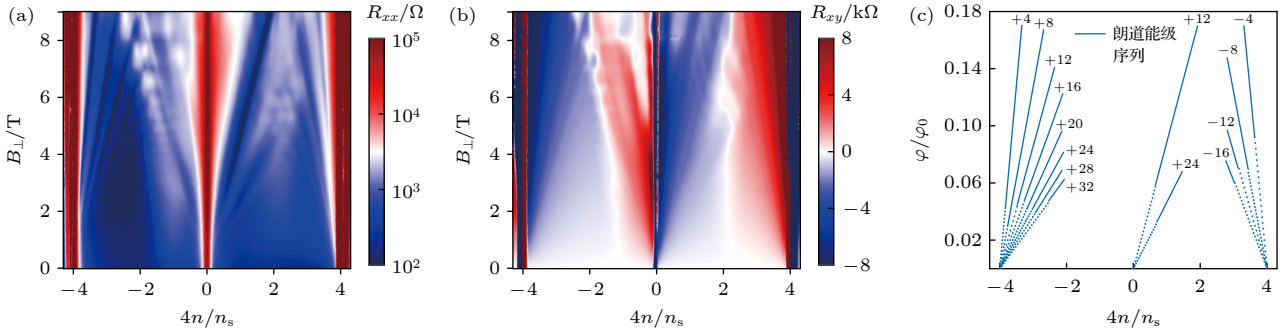


图 2 低温  $T = 2\text{ K}$ ,  $D = 0$  下的磁输运 (a)  $D = 0$  时,  $R_{xx}$  随填充因子  $\nu = 4n/n_s$  和垂直磁场  $B_{\perp}$  的变化; (b)  $D = 0$  时, 横向电阻  $R_{xy}$  随填充因子  $\nu = 4n/n_s$  和垂直磁场  $B_{\perp}$  变化; (c) 从 (a), (b) 中提取得到的朗道能级序列 (蓝色)

Fig. 2. Magnetotransport of resistance at low temperature of  $T = 2\text{ K}$  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注在如图 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  $D = -0.42\text{ V/nm}$  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  $D = 0.5\text{ V/nm}$  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  $B = 8.7\text{ T}$  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  $\sigma_{xy}$  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  $D = -0.42\text{ V/nm}$  和  $D = 0.5\text{ V/nm}$  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.

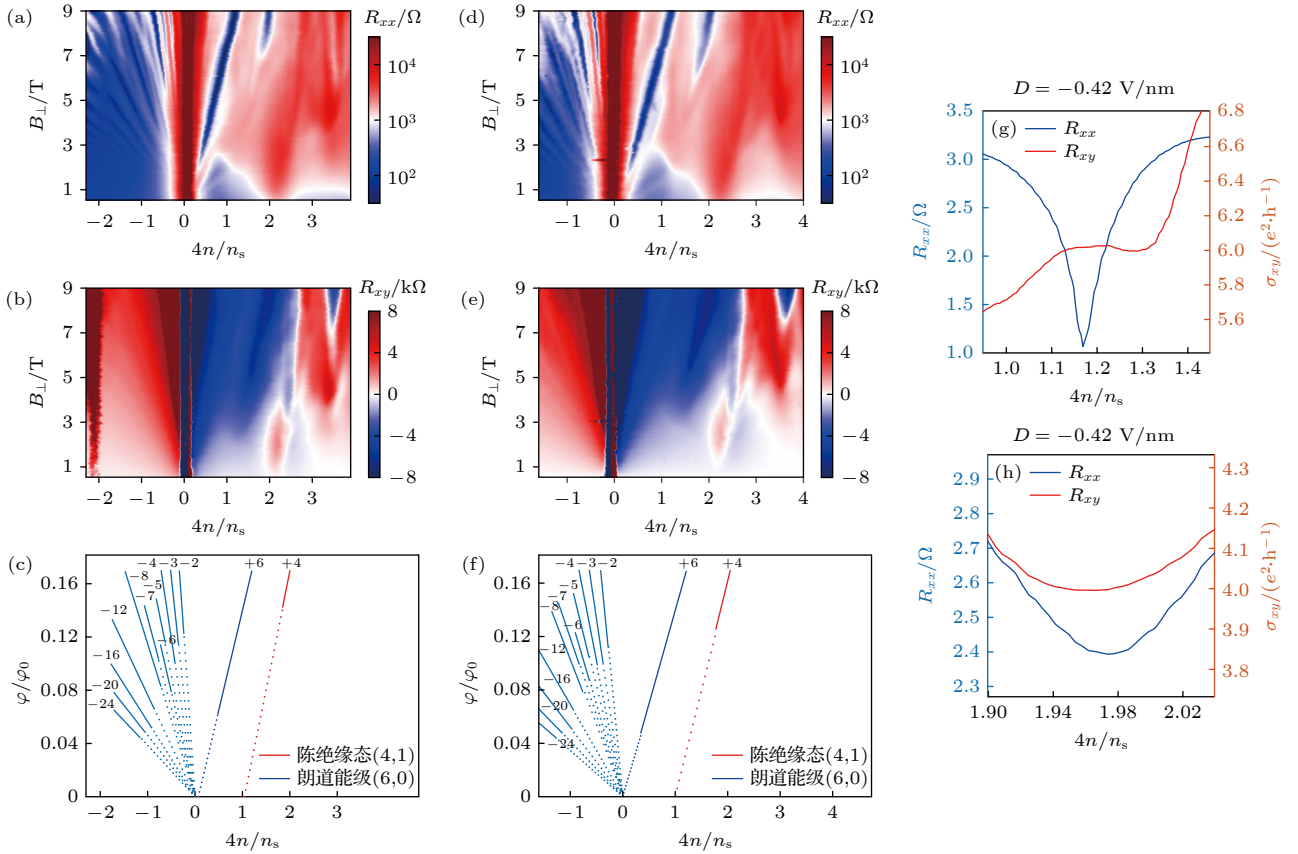


图 3 低温 ( $T = 2\text{ K}$ ) 不同外加电位移场作用下的磁输运性质 (a)  $D = -0.42\text{ V/nm}$  时, 纵向电阻  $R_{xx}$  随填充因子  $\nu$  和垂直磁场  $B_{\perp}$  的变化; (b)  $D = -0.42\text{ V/nm}$  时, 横向电阻  $R_{xy}$  随填充因子  $\nu$  和垂直磁场  $B_{\perp}$  的变化; (c) 从图 3(a), (b) 中提取得到的朗道能级序列 (蓝色) 和陈绝缘态 (红色); (d)  $D = 0.5\text{ V/nm}$  时, 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

Fig. 3. Magnetotransport under different electric displacement field at low temperature  $T = 2\text{ K}$ : (a) Longitudinal resistance  $R_{xx}$  as a function of filling factor  $\nu$  and vertical magnetic field  $B_{\perp}$  at  $D = -0.42\text{ V/nm}$ ; (b) Hall resistance  $R_{xy}$  as a function of filling factor  $\nu$  and vertical magnetic field  $B_{\perp}$  at  $D = -0.42\text{ V/nm}$ ; (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  $\nu$  and vertical magnetic field  $B_{\perp}$  at  $D = 0.5\text{ V/nm}$ ; (e) Hall resistance  $R_{xy}$  as a function of filling factor  $\nu$  and vertical magnetic field  $B_{\perp}$  at  $D = 0.5\text{ V/nm}$ ; (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  $\sigma_{xy}$  of (6, 0) state at vertical magnetic field  $B_{\perp} = 8.7\text{ T}$ ; (h) longitudinal resistance  $R_{xx}$  and Hall conductance  $\sigma_{xy}$  of (4, 1) state at vertical magnetic field  $B_{\perp} = 8.7\text{ T}$ .

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  $\theta$  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<sup>[32]</sup>. (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  $D = -0.42\text{ V/nm}$  下, 纵向电阻  $R_{xx}$  随温度  $T$  和填充因子  $\nu$  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

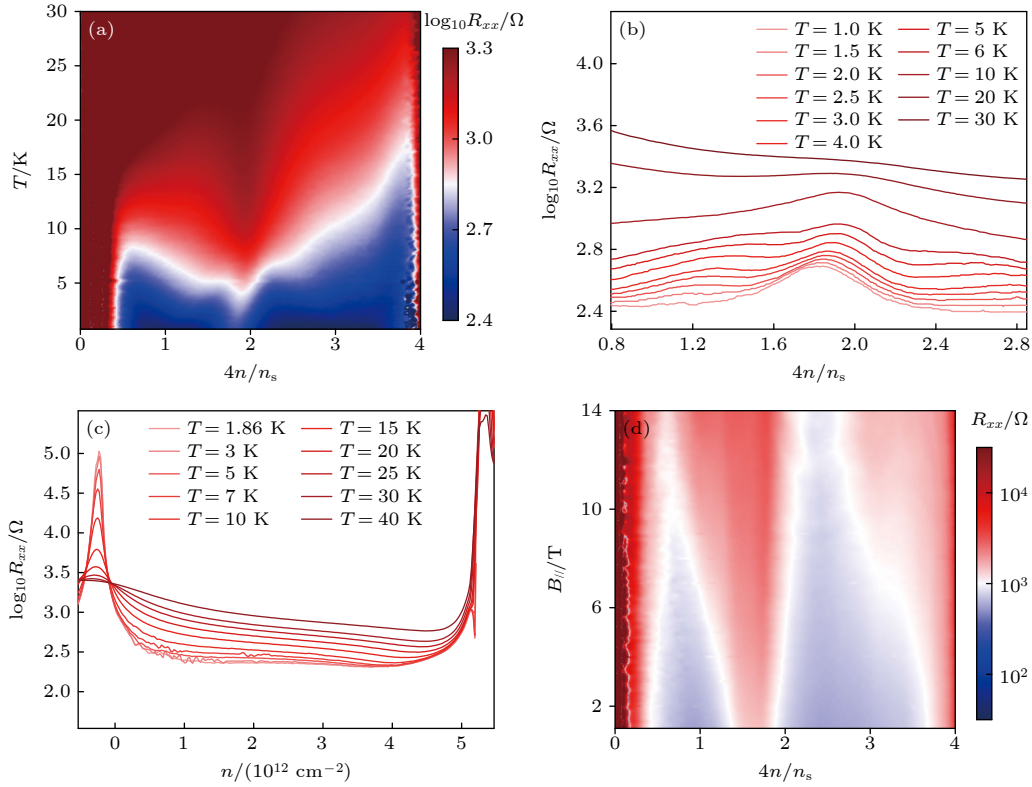


图 4 温度和并行磁场诱导的极化 (a)  $B = 0$ ,  $D = -0.42$  V/nm 时, 纵向电阻  $R_{xx}$  随填充因子  $\nu$  和温度  $T$  变化; (b) 纵向电阻  $R_{xx}$  随填充因子  $\nu$  变化, 取自图 4(a) 的一系列温度下的截线; (c)  $D = 0$  时, 一系列不同温度下纵向电阻  $R_{xx}$  随载流子浓度  $n$  变化; (d)  $T = 0.2$  K 时, 纵向电阻  $R_{xx}$  作为填充因子  $\nu$  和并行磁场  $B_{//}$  函数

Fig. 4. Temperature and parallel magnetic field induced polarization: (a) Longitudinal resistance  $R_{xx}$  versus filling factor  $\nu$  and temperature  $T$  at  $B = 0$  and  $D = -0.42$  V/nm; (b) longitudinal resistance  $R_{xx}$  versus filling factor  $\nu$  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  $\nu$  and parallel magnetic field  $B_{//}$  at  $T = 0.2$  K.

充处的电阻峰对应的填充  $\nu$  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  $\nu$  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<sup>[33]</sup>. 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<sup>[34]</sup>. 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-Jun<sup>1)2)</sup>    Chen Yi-Wei<sup>1)2)</sup>    Zhu Yu-Jian<sup>1)2)</sup>    Huang Yan<sup>1)2)</sup>  
 An Dong-Dong<sup>1)2)</sup>    Li Qing-Xin<sup>1)2)</sup>    Gan Qi-Kang<sup>1)2)</sup>    Zhu Wang<sup>1)2)</sup>  
 Song Jun-Wei<sup>1)2)</sup>    Wang Kai-Yuan<sup>1)2)</sup>    Wei Ling-Nan<sup>1)2)</sup>    Zong Qi-Jun<sup>1)2)</sup>  
 Liu Shuo-Han<sup>1)2)</sup>    Li Shi-Wei<sup>1)2)</sup>    Liu Zhi<sup>1)2)</sup>    Zhang Qi<sup>1)2)</sup>    Xu Ying-Hai<sup>1)2)</sup>  
 Cao Xin-Yu<sup>1)2)</sup>    Yang Ao<sup>1)2)</sup>    Wang Hao-Lin<sup>1)2)3)</sup>    Yang Bing<sup>4)</sup>  
 Andy Shen<sup>4)</sup>    Yu Ge-Liang<sup>1)2)†</sup>    Wang Lei<sup>1)2)‡</sup>

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  $1.48^\circ$ . 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  $^3\text{He}$ . 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](mailto:yugeliang@nju.edu.cn)

‡ Corresponding author. E-mail: [leiwang@nju.edu.cn](mailto:leiwang@nju.edu.cn)





## 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H<sub>2</sub>分子强场电离的影响

Multiconfiguration time-dependent Hartree-Fock treatment of electron correlation in strong-field ionization of H<sub>2</sub> 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>