

特邀综述

石墨烯中新奇量子物态的研究

李思宇^{1†}, 何林^{2†}

1. 湖南大学, 材料科学与工程学院, 长沙 410000;

2. 北京师范大学, 物理学系, 高等量子研究中心, 北京 100875

收稿日期: 2020-12-09; 接收日期: 2020-12-31

【摘要】 石墨烯特殊的晶格结构和能带结构赋予了它独特的电学性质. 近年来, 分数量子霍尔态、魔角石墨烯中的关联绝缘体态和超导态等现象的发现不断证明着石墨烯是一种理想的二维模型体系, 可用于实现一系列新奇的量子物态, 对石墨烯中新奇量子物态的探测和调控也一直是凝聚态物理领域的前沿研究热点之一. 本文将系统地介绍近年来石墨烯中对称性破缺量子物态的研究进展, 包括平带中强关联量子物态的研究以及谷赝自旋调控的研究, 并介绍一种在纳米尺度、单电子精度上探测二维材料体系简并度及对称性破缺态的普适方法, 希望为相关领域的研究人员提供参考和借鉴.

关键词: 石墨烯, 量子物态, 平带, 电子-电子相互作用, 谷赝自旋

PACS: 7460, 7490, 0290

DOI: 10.13380/j.ltpl.2020.04.001

The Novel Quantum States in Graphene

LI Siyu^{1†}, HE Lin^{2†}

1. College of Materials Science and Engineering, Hunan University, Changsha 410000, People's Republic of China;

2. Center for Advanced Quantum Studies, Department of Physics, Beijing Normal University, Beijing 100875, People's Republic of China

Received date: 2020-12-09; accepted date: 2020-12-31

【Abstract】 Because of the special lattice structure and band structure, graphene owns novel electronic properties. Recently, graphene has been proved to have considerable novel quantum states, since the observations of fractional quantum Hall state, correlated insulator states and superconducting states in magic-angle twisted bilayer graphene. Successfully detecting and manipulating these novel quantum states in graphene is one of the most attractive topics in condensed matter physics. This review will introduce the recent progresses about novel quantum states in graphene, including the studies of strong correlated states in flat bands of graphene and the studies of manipulating valley pseudo-spin of graphene. Furthermore, we also introduce a pervasive detecting method in 2D materials, which could detect degeneracy and broken symmetry states at nanoscale and single-electron accuracy. We hope that this review could provide useful reference to related researchers.

Keywords: Graphene, Quantum states, Flat band, Electron-electron interaction, Valley pseudo-spin

PACS: 7460, 7490, 0290

DOI: 10.13380/j.ltpl.2020.04.001

Reference method: LI Siyu, HE Lin, Low. Temp. Phys. Lett. **41**, 0169 (2020)

[†] lisiyu@hnu.edu.cn, helin@bnu.edu.cn

1 引言

石墨烯是由碳原子组成的六角蜂窝状二维晶体,其特殊的晶格结构决定了它特殊的能带结构及电学性质^[1-7].石墨烯在低能区的能带结构表现为线性的色散关系,这就决定了石墨烯中的载流子是无质量的狄拉克费米子^[1].无质量狄拉克费米子作为一种相对论性的粒子,将使得石墨烯大大区别于传统的金属和半导体材料,表现出许多相对论性性质,如克莱因隧穿效应^[8,9].另一方面,石墨烯可以表现出二维电子气的行为,在外加磁场时会产生朗道量子化.与半导体异质结处形成的二维电子气不同的是,石墨烯中产生的是反量子霍尔效应^[2,3].同时,石墨烯性质稳定、制备技术成熟,便于对其结构和性质进行调控.因此,科学家们通过缺陷修饰^[10-15]、堆垛层错^[16-20]、引入应变结构^[21-25]、引入转角^[26-30]等手段对石墨烯的结构和性质进行调控,在石墨烯中实现了更多的新奇量子物态.

给石墨烯体系引入平带结构将使得体系中的电子-电子相互作用显著地体现出来,许多强关联量子物态,例如分数量子霍尔效应^[31-35]、铁磁性^[36]和超导态^[20,30,37,38]等,将有望在石墨烯体系中实现,这也使得平带相关的强关联物性研究成为了近几年凝聚态物理领域的热门课题.通过外加磁场^[2,3,39]、构建小转角双层石墨烯^[29,30]、ABC堆垛三层石墨烯^[20]等方法可以给石墨烯体系引入平带,相关的输运实验测量以及扫描隧道显微镜探测均取得了一系列突破性进展.

石墨烯由于具有特殊的能带结构,电子还具有谷赝自旋这一自由度^[1].人们希望能够像利用自旋一样利用谷赝自旋,因此谷电子学方面新奇量子物态的研究近年来取得了飞速的发展.科学家们已经通过不同的方法在石墨烯中实现了谷极化^[40-42],并探测到了谷极化电流^[42].近期,北师大何林教授课题组首次通过应变产生的赝磁场和真实磁场共同作用在局域范围内实现了对谷赝自旋的操控^[24],对谷电子学的研究具有重要意义.

本文将在第二部分和第三部分总结近期石墨烯平带中强关联量子物态以及谷赝自旋调控这两方面的研究进展,并在第四部分综述利用最新发展的Edge-free量子点法探测石墨烯体系对称性破缺态的实验结果.

2 石墨烯平带中的强关联量子物态

近年来,寻找并研究具有低能平带结构的材料体系引起了科学家们的广泛关注.在这些平带中,电子的有效质量急剧增大,电子的库伦排斥能将远远大于电子的动能,电子-电子相互作用效应显著,对应将会产生许多新奇的强关联量子物态^[43].通过外加加强磁场以及构建小转角双层石墨烯可以给石墨烯体系引入平带.

2.1 零朗道能级的量子霍尔铁磁态

石墨烯作为一个理想二维体系,在外加磁场下会产生朗道量子化,对应产生朗道能级(平带).2005年 Philip Kim 课题组^[3]及 A. K. Giem 课题组^[2]分别在输运实验上探测到了单层石墨烯的反量子霍尔效应,其量子霍尔平台出现在填充因子为半整数的位置:

$$\sigma_{xy} = \pm (ge^2/h)(N + \frac{1}{2}) \quad (1)$$

其中 N 为整数, $g = 4$ 代表石墨烯具有四重简并度.利用扫描隧道显微镜技术 (STM) 也可以直观地探测单层石墨烯的朗道能级^[44,45].石墨烯在磁场下非零的贝利曲率 (Berry phase 为 π) 导致了零朗道能级的出现以及霍尔平台出现 $1/2$ 的平移,这些特征是无质量狄拉克费米子相对论特性的体现,也是传统二维电子气体系所不具备的^[2,3].

单层石墨烯每一级朗道能级(平带)均具有石墨烯谷和自旋四重简并度,这为研究石墨烯中的对称性破缺态提供了一个良好的平台.2006年起,科学家们通过提升样品质量有效地提高了样品的电子迁移率,进一步增强外磁场他们在实验上又相继观察到了一些新的整数量子霍尔态^[46-49],例如,填充因子为 $\nu = 0, \pm 1, \pm 4$ 的量子霍尔态^[46].输运实验中这些新的整数量子霍尔平台来源于强磁场下电子-电子相互作用引入的绝缘能隙,同时意味着石墨烯中的简并度被解除,出现了对称性破缺态,人们将石墨烯朗道能级在整数填充时出现的对称性破缺态称为 $SU(4)$ 量子霍尔铁磁态^[50-53].Y. Zhang 等^[46]在零朗道能级处观察到了填充因子为 $\nu = 0, \pm 1$ 的量子霍尔平台,表明零朗道能级谷和自旋的四重简并度都被解除了,但是究竟先解除的是谷简并度还是自旋简并度其实并不清楚.要想判断是谷劈裂还是自旋劈裂需要用到磁输运实验中旋转磁场的方法进

行测量. 总磁场 B_T 垂直磁场 $B_\perp$ 的关系是: $B_\perp = B_T \cos\theta$. 自旋劈裂大小与旋转角度无关, 它对不同方向的总磁场均响应, 会随着总磁场的增大而增大; 而谷劈裂本质来源于石墨烯的轨道效应, 仅对垂直石墨烯平面的磁场响应, 其大小会受到旋转角度的影响.

2012 年, A. F. Young 等人^[49] 利用旋转磁场的方法对石墨烯中的量子霍尔铁磁态与磁场的关系进行了系统地测量. 他们测量发现, $\nu = 0$ 时劈裂大小随着垂直磁场 $B_\perp$ 的增大而线性增大, 并拟合出有效 g 因子约为 23; 但是当垂直磁场 $B_\perp$ 固定改变旋转角度时, $\nu = 0$ 的劈裂大小随着总磁场 B_T 的角度增大而减小, 这显然不符合自旋劈裂的规律, 因此判断零朗道能级半填充 $\nu = 0$ 时的劈裂属于谷劈裂. 接着对非零朗道能级半填充的绝缘态进行测量, 测量发现 $N = -1, -2, -3$ 朗道能级半填充 ($\nu = -4, -8, -12$) 时的劈裂大小均随着垂直磁场 $B_\perp$ 和总磁场 B_T 的增大而增大, 属于自旋劈裂, 拟合得到的有效 g 因子分别为 7, 6, 4^[49]. $\nu = 0$ 时绝缘能隙的大小与连续狄拉克模型中考虑库伦相互作用的计算结果相似, 但是这一模型预测绝缘能隙的大小与 $\sqrt{B_\perp}$ 成正比, 与实验结果并不符合, 目前依然没有相应的理论模型能够自恰地解释 $\nu = 0$ 时绝缘能隙与磁场的线性依赖关系. 另一方面, $\nu = -4, -8, -12$ 时自旋劈裂的有效 g 因子远大于石墨烯塞曼劈裂的 g 因子 2, 这里增大的自旋劈裂可能是由费米面处交换相互作用导致的^[54-57]. 为了深入理解量子霍尔铁磁态中的强关联物理, 理论工作者提出了许多不同的模型去解释相关的实验现象, 同时也预测了这一体系中可能出现的新奇量子物态, 比如零朗道能级半填充时可能出现 CDW 相 (charge density wave state)、CAF 相 (canted antiferromagnetic state) 和 PSP 相 (partially sublattice polarized state)^[34, 49-53, 58-62] (如图 1(a) 所示).

强磁场下的电子-电子相互作用除了导致单层石墨烯中出现新的整数量子霍尔态, 理论预测还会出现分数量子霍尔态, 其反映电子的集体量子行为^[51, 63-66]. 2009 年, Philip Kim 课题组^[32] 及 E. Y. Andrei 课题组^[31] 制备出了悬浮石墨烯器件, 有效地降低了衬底的影响, 将样品迁移率提高到 $200000 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$, 并成功地在低温强磁场下探测到了 $\nu = 1/3$ 的量子霍尔平台. 随后, 研究者们发现将单层石

墨烯样品放在六方氮化硼 (hBN) 衬底上可以进一步提高样品的平整度及迁移率. 通过输运测量, 他们又相继看到了更多分数量子霍尔态, 如零朗道能级处 $\nu = \pm 2/3, \pm 4/3, \pm 5/3$ 的量子霍尔态 (如图 1(b) 所示)^[34, 67-69] 和 $N = 1$ 朗道能级处 $\nu = 7/3, 8/3, 10/3, 11/3, 13/3$ 的量子霍尔态^[67-69]. 2018 年, A. A. Zibrov 等^[34] 在实验上不仅观察到了 $\nu = \pm 2/3, \pm 4/3, \pm 5/3$ 的分数量子霍尔态, 还在狄拉克点附近首次观察到了填充因子为偶数分母的 $\nu = \pm 1/2, \pm 1/4$ 分数量子霍尔态 (如图 1(b)(c)(d) 所示). $\nu = \pm 1/2, \pm 1/4$ 分数量子霍尔态的出现及随后的消失标志着 $\nu = 0$ 处出现了 PSP-CAF 相变. 他们分析认为, 由 hBN 衬底打破单层石墨烯 A、B 子格对称性而引入的能隙 Δ_{AB} ^[70, 71] 对该现象的出现起重要作用. 磁场下反铁磁相互作用引入的各向异性与子格对称性破缺引入的能隙 Δ_{AB} 存在竞争关系, 导致在电中性点和近邻分数量子霍尔态附近出现了子格有序相和自旋有序相之间的相变, 如图 1(e) 所示为理论计算得到的单层石墨烯 $\nu = 0$ 时随磁场 B 和子格劈裂 Δ_{AB} 变化的相图.

对于理论预测的 CDW 相、PSP 相和 CAF 相目前仍然缺乏实空间的直观表征. 如果能够在实空间直观地表征出这三种相, 将有望解释零朗道能级半填充时对称性破缺态的产生原因. 然而之前的研究多采用输运测量手段, 缺乏空间分辨, 难以在实空间区分这三种相, 相关的测量也一直存在争议. 扫描隧道显微镜技术 (STM) 具有原子级的空间分辨, 能够在实空间直观探测电子态的分布. 因此, 李思宇等^[72] 利用 STM 技术系统地研究了单层石墨烯零朗道能级的量子霍尔铁磁态随磁场和填充因子的变化, 并利用 STM 成像技术直观地表征了其电子态在实空间的分布, 如图 2 所示. 实验结果表明, 在零朗道能级半填充 ($\nu = 0$) 时, 其谷劈裂 ΔE_V 以及两个谷各自的自旋劈裂 ΔE_{SL} 、 ΔE_{SR} 均随着垂直磁场 B 增大而线性增大. 线性拟合得到谷劈裂 ΔE_V 的有效 g 因子约为 $g_V = 14$, 自旋劈裂的有效 g 因子约为 $g_S = 4.5$, 谷劈裂和自旋劈裂异常增大的有效 g 因子均反映电子-电子相互作用的影响. 在单层石墨烯中, 库伦相互作用的大小与实验上观察到的 $\nu = 0$ 谷劈裂数值相近, 然而用考虑库伦相互作用的连续性模型计算后发现, $\nu = 0$ 谷劈裂的大小与 $\sqrt{B}$ 成正比^[49], 与实验结果并不符合. 而考虑其他相互作用

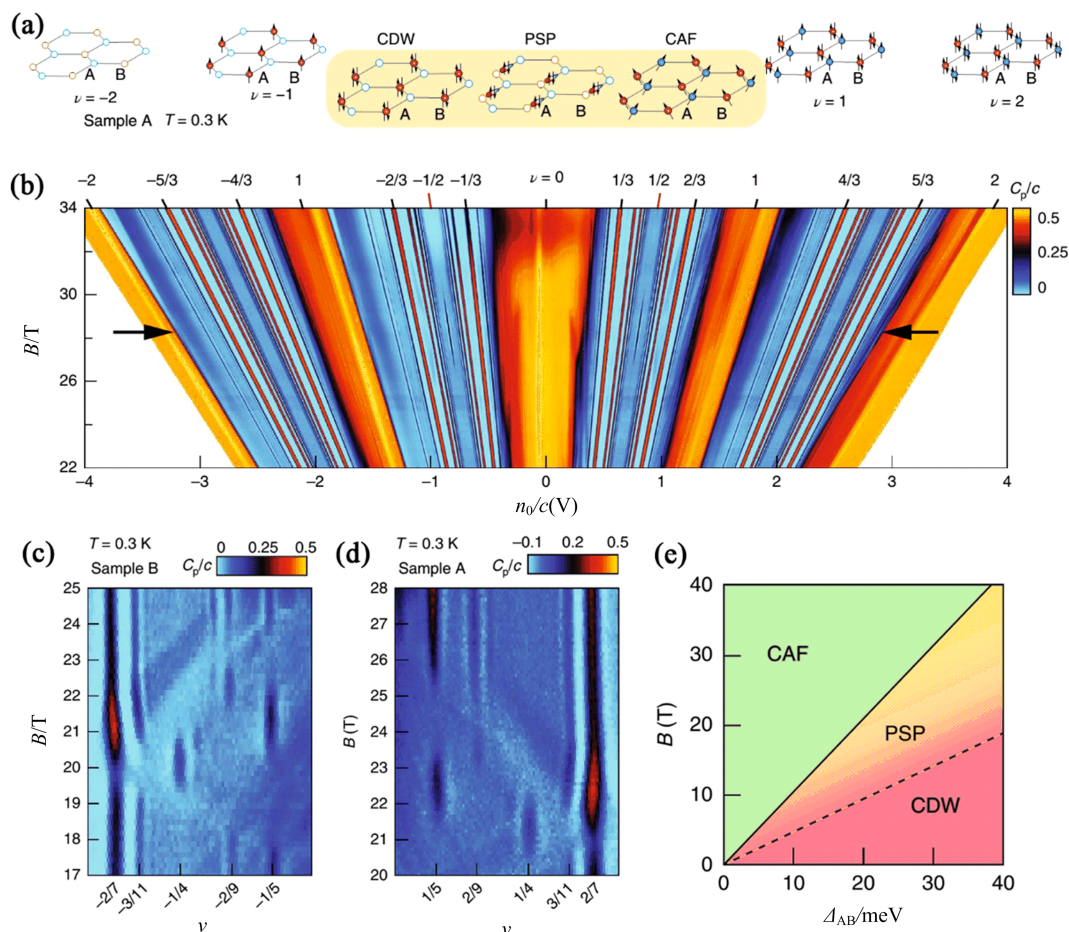


图 1^[34] (a) 零朗道能级在整数填充时基态中自旋极化和子格极化情况的示意图。 $\nu = -2$ 时零朗道能级完全未填充； $\nu = +2$ 时零朗道能级完全填充； $\nu = \pm 1$ 时子格和自旋完全极化； $\nu = 0$ 零朗道能级半填充时，理论预言有三种不同的基态：CDW 相、PSP 相和 CAF 相。(b) 穿透电容 C_p/c 随磁场 B 和电荷密度 $n_0 = c(v_t + v_b - 2v_s)$ 的变化关系。其中 v_t, v_b, v_s 分别是顶栅、背栅、样品偏压， c 为两个栅极之间的平均几何电容 ($T = 300$ mK)。(c) 为从 (a) 图黑色箭头处提取的 $B = 28.3$ T 时填充因子 $\nu = -2$ 和 $\nu = 2$ 之间的穿透电容 C_p 测量值。(d) 放大显示了 C_p/c 随磁场 B 和电荷密度 n_0 变化的测量结果，分别显示了填充因子为 $\nu = -1/4$ 和 $\nu = 1/4$ 的分数量子霍尔态。(e) 理论计算得到的单层石墨烯 $\nu = 0$ 时随磁场 B 和子格劈裂 Δ_{AB} 变化的相图。

的模型中，有些能模拟出 $\nu = 0$ 谷劈裂与磁场 B 的线性关系^[73,74]，但是得到的谷劈裂大小却远小于实验值。李思宇等^[72]推测，实验上 $\nu = 0$ 谷劈裂随磁场变化的有效 g 因子 $g_v = 14$ ，可能与磁场下强相互作用引入的轨道磁矩有关，这一推测还需要进一步的理论计算加以支持。另一方面，图 2(a)、(b) 的实验结果也表明，零朗道能级谷劈裂和自旋劈裂的大小也显著受到填充因子的影响。当填充因子从 0 变为 -1 后，谷劈裂大小随即减小了大约 25%，而自旋劈裂的大小则显著增大。这是因为，当填充因子 $\nu = 0$ 时，费米面穿过的是谷极化的能隙，而当填充因子 $\nu = -1$ 时，费米面则穿过的是自旋极化的能隙，当填充因子由 0 减小到 -1 后，随着费米面填充位置的变化，

谷劈裂大小随之减小而自旋劈裂则随之增大。这一现象充分说明费米面处的交换相互作用对零朗道能级的对称性破缺态具有显著影响。

在得到零朗道能级的量子霍尔铁磁态之后，李思宇等^[72]利用 STS 成像技术直接探测了 $\nu = 0$ 量子霍尔铁磁态的基态在实空间的分布，如图 2(c) 所示。通过晶格对比可以发现，此时电子局域态密度分布在石墨烯的碳-碳键上，这一现象符合 PSP 相中凯库勒畸变的特点，这也是首次在实空间中探测到 PSP 相的直接证据。PSP 相中凯库勒畸变的出现使得石墨烯单位晶胞的大小变为原来的三倍，从而打破了石墨烯的手征对称性，并在狄拉克点附近引入了一个能隙^[75-78]。因此，图 2(a) 中实验探测到 $\nu = 0$

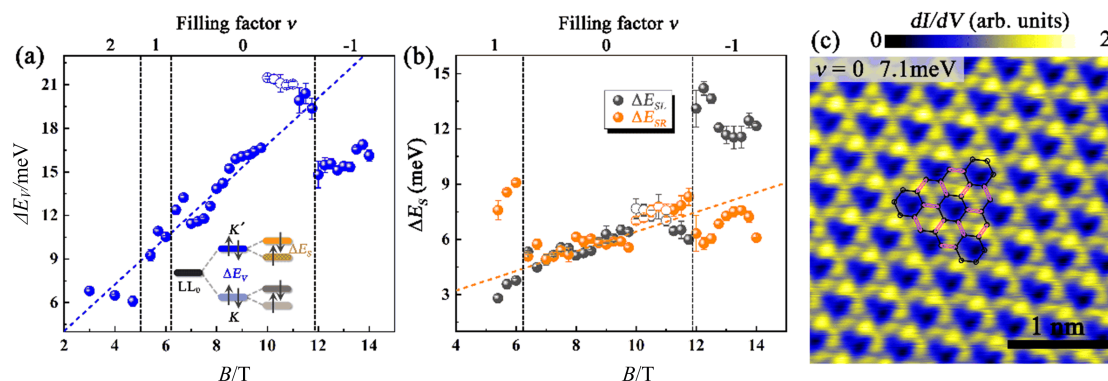


图 2^[72] (a)单层石墨烯零朗道能级谷劈裂 ΔE_V 随磁场 B 和填充因子 ν 的变化关系. (b)零朗道能级两个谷的自旋劈裂 ΔE_{SL} 、 ΔE_{SR} 随磁场 B 和填充因子 ν 的变化关系. (c)样品的填充因子 $\nu=0$ 、磁场为 13 T 时,在零朗道能级其中一个劈裂峰 7.1 meV 处测量的 STS 成像图.图中态密度点亮的位置为石墨烯的碳碳键,对应强相互作用导致凯库勒畸变相.

处的谷极化能隙是由强相互作用引入的凯库勒畸变相(PSP 相)导致的.

PSP 相的直观探测是单层石墨烯量子霍尔铁磁态研究中的重要进展,后续如果结合外加背栅的技术,还能继续研究该体系中这些强相互作用相的相变,并进一步探究石墨烯在强磁场下出现强关联量子现象的物理机制.

2.2 小转角双层石墨烯中的强关联物态

早在 2008 年就有理论预言称,当费米面穿过石墨烯的范霍夫峰时,将有可能产生由电子-电子相

互作用导致的强关联量子现象,比如超导、磁性等^[79].但是单层石墨烯的范霍夫峰距离狄拉克点约 3 eV,通过加栅压或者化学掺杂的方法都难以将费米面移到单层石墨烯的范霍夫峰处,相关的强关联量子物态也就难以在实验上实现.而双层转角石墨烯可以解决这个难题,它具有两个位置可调的范霍夫峰,通过减小两层之间的转角就可以将范霍夫峰移近狄拉克点(如图 3(a)所示)^[26,27,80,81].当转角减小到 1.1 度附近时,将在狄拉克点附近出现平带(如图 3(b)所示),同时费米速度减小到接近于 0,我们

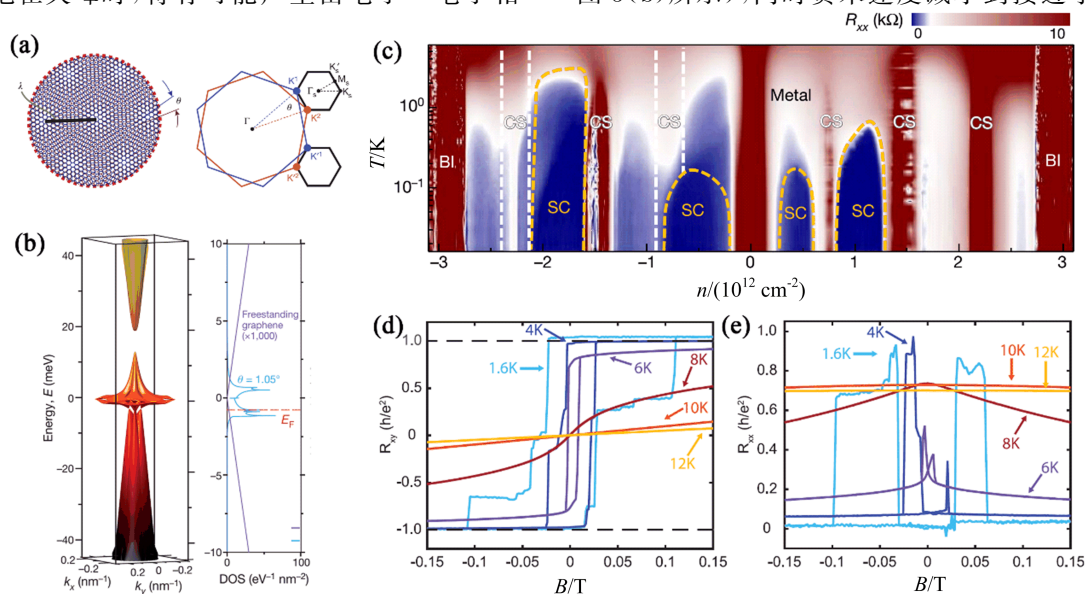


图 3 (a)左图:双层转角石墨烯的结构示意图.右图:在倒空间中双层转角石墨烯的扭转角使得上下两层石墨烯的狄拉克锥发生交叠,在 $k = 0$ 处形成范霍夫奇点示意图^[29]. (b)魔角石墨烯超晶格在第一个迷你布里渊区的能带结构,及其对应的态密度^[30]. (c)四电极法测量的魔角石墨烯电阻 R_{xx} 随温度和电荷密度变化的相图. (d)、(e)在 $n = 2.37 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ 时变温测量的 R_{xx} 和 R_{xy} 随磁场 B 的变化关系^[87].

将这一角度称为“魔角”^[82-84]. 在“魔角”附近, 电子的动能大大减小, 而电子之间的库伦相互作用能则显著体现了出来, 这使得“魔角”石墨烯成为一个强相互作用的体系, 为研究石墨烯中由电子-电子相互作用引入的新奇量子物态提供了一个良好的平台^[29,30,85,86].

2015 年, 何林课题组首次利用扫描隧道显微镜探测到了“魔角”石墨烯狄拉克点处的平带产生的态密度峰^[28]. 2018 年 Pablo Jarillo-Herrero 课题组利用输运手段探测到了“魔角”石墨烯中的关联绝缘体态及超导态, 相关文章发表在《自然》杂志上^[29,30]. 他们测量发现, 在“魔角”石墨烯的平带半填充时, 出现了绝缘态^[29]. 而当费米面的填充位置稍微偏离半填充时, 他们进一步探测到了超导态. “魔角”石墨烯中的关联绝缘体态及超导态是无法通过单粒子模型来描述的, 强多体相互作用在这里起到了关键性的作用. 能够在石墨烯这样简单的二维体系实现超导是一件令人激动的重大突破, Pablo Jarillo-Herrero 课题组的两个工作随即引起了科学界的广泛关注. 后续不断有输运实验组重复出了 Pablo 课题组的结果, 并通过提高样品质量, 在“魔角”石墨烯中观察到了范霍夫峰所有整数填充位置的关联绝缘体态以及稍微偏离这些填充位置的超导态^[37,38] (如图 3(c) 所示). 关于“魔角”石墨烯超导机制的理论解释目前仍然存在争议^[88-92], 人们希望通过扫描隧道显微镜的测量给出更多“魔角”石墨烯超导的信息, 来帮助判断其超导机制. 而目前的几个 STM 工作, 还没有在“魔角”石墨烯中探测到超导现象, 推测可能与样品的均匀性、应变^[93-95]等因素有关. 尽管 STM 工作还没有探测到超导态, 相关的测量结果也给出了一些“魔角”石墨烯中电子-电子相互作用的证据: (1) 当范霍夫峰部分填充时会出现劈裂, 同时另一个范霍夫峰的展宽也会显著增大; (2) 当费米面填充在两个范霍夫峰中间的狄拉克点附近时, 两个范霍夫峰的间距会显著增大; (3) 范霍夫峰半填充时, 其电子局域态密度在实空间的分布出现了 C_3 对称性破缺^[96-99]. 除了“魔角”石墨烯, 研究者们在其他小转角双层石墨烯中也探测到了由电子-电子相互作用引入的强关联量子物态, 例如, 在输运实验上, C. -N. Lau 课题组在 0.93° 双层转角石墨烯中观察到了关联绝缘体态和超导态^[100]. 在 STM 实验上, 刘亦文等^[101]发现 1.64° 双层转角石墨烯的范霍夫峰在

半填充时出现了由电子-电子相互作用导致的劈裂; 李思宇等^[86]利用 STM 对 1.2° 双层转角石墨烯进行了系统地测量, 发现电子-电子相互作用导致其范霍夫峰发生了劈裂, 并使得范霍夫峰能量处电子局域态密度分布出现了 C_3 对称性破缺. 这一实验结果是小转角双层石墨烯中具有强电子-电子相互作用的直观证据.

另一方面, 理论预测“魔角”石墨烯低能区能带可以具有非零的陈数 (Chern number), 这就意味着“魔角”石墨烯将具有拓扑性质和轨道磁性^[38,102-108]. 2019 年, A. L. Sharpe 等在“魔角”石墨烯的平带 $3/4$ 填充时观察到了磁滞现象, 证明体系出现了由强相互作用导致的铁磁态. 紧接着, M. Serlin 等^[87]在“魔角”石墨烯的平带 $3/4$ 填充时探测到了量子反常霍尔效应, 如图 3(d)(e) 所示, 他们在低温零磁场下的输运测量中直接观察到了很好的量子霍尔平台. 成功探测到量子反常霍尔效应直接证实了“魔角”石墨烯的具有拓扑性质, 同时还具有轨道铁磁性. 理论预测称, “魔角”石墨烯中的轨道磁矩是由手性电流环产生的, 该电流环的尺寸约为莫尔条纹的大小^[108,109]. 然而, 目前还没有实验能直接探测到“魔角”石墨烯中的轨道磁矩大小.

2020 年, 李思宇等^[110]利用高分辨的 STM 和 STS 实验, 探测到了 1.68° 双层转角石墨烯中由手性电流环产生的巨大轨道磁矩, 如图 4 所示. 实验结果表明, 当 1.68° 双层转角石墨烯的范霍夫峰由完全未填充变为半填充后, 费米面处的强电子-电子相互作用使得范霍夫峰发生了劈裂 (如图 4(a) 中 0T 下的谱线), 劈裂后范霍夫峰的强度变为原来范霍夫峰强度的一半, 表明自旋简并度或者谷简并度发生了劈裂. 另外, 输运实验对“魔角”石墨烯的探测也发现, 范霍夫峰半填充时简并度变为了 2^[29]. 为了进一步探究 1.68° 双层转角石墨烯中范霍夫峰半填充时产生劈裂的原因, 李思宇等^[110]接着在外加强磁场下对其进行了高分辨 STS 探测. 如图 4(a)(b) 所示, 范霍夫峰半填充时的劈裂随着磁场的增大而线性增大, 线性拟合得到有效 g 因子约为 10.7, 与单层石墨烯零朗道能级半填充时谷劈裂的有效 g 因子非常接近^[49,72], Hartree-Fock 近似理论计算也证实范霍夫峰半填充时的基态为谷极化态. 在 1.68° 双层转角石墨烯中, 衬底电势作用打破了体系的 C_{2z} 对称性, 使其具有了非零的贝利曲率和非零的

谷陈数, 从而导致体系中具有轨道磁矩^[36,38,87,103,105,108,109]. 该轨道磁矩是由莫尔条纹上的手性电流环产生的, 图 4(c) 所示为理论计算得到的 1.68° 双层转角石墨烯莫尔条纹上的电流密度分布. 在外加磁场时, 莫尔条纹上的轨道磁矩将转向外

磁场的方向, 并与外磁场耦合使得谷劈裂的大小随着磁场的增大而增大. 由图 4(b) 得到的有效 g 因子可以推断出 1.68° 双层转角石墨烯每个莫尔条纹上的轨道磁矩大约为 $10.7\mu_B$. 该实验结果表明小转角双层石墨烯体系是研究纯轨道磁性的良好平台^[110].

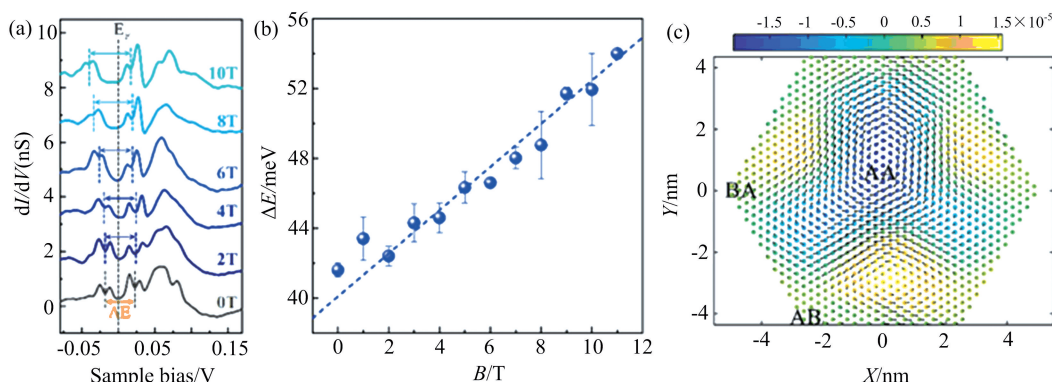


图 4^[110] (a) 不同磁场下, 当 1.68° 双层转角石墨烯左边范霍夫峰半填充时在 AA 堆垛区域采集的 STS 谱线. (b) 范霍夫峰半填充时劈裂大小 ΔE 随磁场的变化, 蓝色虚线是劈裂大小与磁场的线性拟合. (c) 理论计算结果: 在实空间中, 1.68° 双层转角石墨烯莫尔条纹上电流密度的分布 (用黑色箭头表示), 以及由电流产生的磁场的分布 (用颜色表示). 计算时考虑了 1.68° 双层转角石墨烯中存在单轴应变.

在小转角双层石墨烯中探测到由电子-电子相互作用导致的超导态、铁磁性、量子反常霍尔效应等强关联量子物态, 不断向我们展示石墨烯是一个理想的模型体系, 能够表现出各种新奇的量子物态. 除了双层转角石墨烯, 构建 ABC 堆垛三层石墨烯^[20,111]、双层-双层转角石墨烯^[112,113] 同样能够在石墨烯体系中引入平带结构, 科学家们在对这些体系的研究中也探测到了各种新奇的量子物态. 这些石墨烯平带体系中蕴含着丰富的强关联物理现象, 其中一些现象的物理机制目前依然存在争议, 例如, “魔角”石墨烯的超导机制还未有定论. 因此, 可以预见未来石墨烯平带相关的强关联量子物态仍将是实验和理论物理学家们关注的焦点.

3 应变石墨烯中谷赭自旋的调控

利用电子的自旋这个内秉自由度可以制备一系列新型的低能耗器件, 在电子学器件中有巨大的应用前景. 在很多材料 (比如石墨烯) 中, 由于特殊的能带结构, 电子还具有谷赭自旋这一重自由度. 科学家们希望能够像利用自旋一样将谷赭自旋应用于电子学器件, 因此谷电子这一新兴学科在近些年受到了广泛的关注并得到了迅猛的发展. 关于石墨烯中谷赭自旋的研究, 早在 2007 年理论工作者就开创性地

提出了在空间反演对称破缺的石墨烯中通过圆偏振光激发产生谷极化以及相关的谷霍尔效应^[114]. 2014 年, 科学家利用六方氮化硼作为衬底在石墨烯中产生空间反演对称性破缺, 采用 non-local 的方法探测到了谷极化的电流^[42]. 2015 年, L. Ju 等^[17] 在输运实验上证明双层石墨烯 AB-BA 畴界具有拓扑边界态, 可以传输谷极化的电流; 随后殷隆晶等^[18] 利用扫描隧道显微镜对这种畴界和其拓扑边界态进行了直接观察. 几乎同时, 实验上也证明在 AB 堆垛双层石墨烯上两个相邻的区域上下两层加方向相反的电势也能获得类似 AB-BA 的畴界^[115,116], 并进一步实现了量子谷霍尔效应和谷极化电流的开关^[116]. 可以看出关于谷赭自旋这一自由度的研究是当前凝聚态物理领域的前沿热门课题, 基于谷赭自旋的输运性质研究已经取得了很多突破性成果, 但是到目前为止还没有有效的办法能够在局域范围内控制谷赭自旋的极化和翻转. 由于谷赭自旋是材料能带结构赋予的自由度, 而且在本征石墨烯中 K_+ 和 K_- 两个谷是简并的, 所以要对谷进行调控不像调控电子自旋那么直观, 通常需要改变材料的能带才能达到操控的目的.

引入应变结构是在局域范围内改变材料能带结构的有效办法, 所以一个直观地想法是通过应变结

构来帮助实现石墨烯中谷赝自旋的操控. 应变石墨烯中的晶格形变将改变最近邻碳原子之间的跃迁能量, 从而影响石墨烯的能带结构并直接影响其低能区电子的行为和性质^[117,118]. 一些特定的应变结构能够产生一个巨大的赝磁场, 其对低能区电子行为的影响可以等效为一个外加的垂直磁场. 因此, 在外加磁场为零时, 赝磁场的作用能够使石墨烯在低能区产生朗道量子化, 从而产生赝朗道能级^[21,117-125]. 实验上已经在应变石墨烯上探测到了由赝磁场导致的赝朗道能级, 根据单层石墨烯朗道量子化公式可以拟合得到赝磁场的大小^[21,23]. 应变强度或形变程度不同将导致其产生的赝磁场大小有较大的差别, 例如 N. Levy 等^[21]在 Pt(111) 面上生长出了陡峭的石墨烯纳米泡并探测到赝磁场大小约为 300T, 而李思宇等^[23]探测到 Rh 衬底上生长的石墨烯纳米褶皱结构上赝磁场约为 0.6T. 为了研究石墨烯中的赝磁场和赝朗道能级, 人们已经发展了不同的方法在石墨烯中引入应变结构^[23,25,126-132]. 何林课题组利用 CVD 法在 Rh 箔上生长出了连续的褶皱石墨烯结构, 利用 STM 探测到了褶皱上的赝朗道能级峰^[23,130,131], 并发现赝磁场的作用还能在双层石墨烯中实现零磁场下最低朗道能级的谷极化^[131]; 在一维应变结构中, 他们还发现应变引入的能带结构变化是高度各向异性的: 它可以在一个方向形成类似于朗道能级的平带, 但是在另一个垂直方向依旧保持石墨烯的线性色散关系. 基于这个发现, 他们提出了一维朗道量子化的全新概念. 2019 年狄增峰课题组和何林课题组合作在锗衬底上的石墨烯中利用功能性 AFM 针尖可控制备出了不同尺寸的石墨烯纳米泡^[25]; 锗衬底上天然吸附有较多的氢原子, 通过 AFM 针尖施加电压将使得氢原子从锗原子上脱附并结合形成氢气分子, 氢气分子聚集将在石墨烯上鼓出纳米泡. 他们通过控制 AFM 针尖施加的电压大小可以调控纳米泡的尺寸, 并利用 STM 探测到该石墨烯纳米泡上具有三轴对称的赝磁场.

尽管石墨烯中赝磁场的作用能实现零磁场下的朗道量子化, 但是赝磁场和外加真实磁场还是存在差别的. 两者的区别主要体现在三个方面: (1) 赝磁场没有破坏时间反演对称性, 它在石墨烯两个谷中大小相等、方向相反^[117,119], 而真实磁场破坏了时间反演对称性, 在两个谷的方向相同. (2) 赝磁场的大小和方向只依赖于局域应变, 所以可以在纳米尺度

内改变方向^[121], 而真实磁场却不能. (3) 赝磁场只包含轨道场, 能导致电子做回旋运动, 产生朗道量子化; 而真实磁场既包含轨道场又包含塞曼场, 它不仅能使电子做回旋运动, 还会影响电子的自旋. 基于赝磁场和真实磁场的差别, 何林课题组的李思宇等^[24]提出可以利用赝磁场和真实磁场的共同作用来实现对谷赝自旋的操控, 它可以像磁场调控自旋一样来调控谷赝自旋的极化和翻转, 其基本原理如图 5 所示: 当应变产生的赝磁场 B_s 和真实磁场 B 共同作用到石墨烯上时, 两个谷感受到的真实磁场方向相同、赝磁场方向相反, 因此作用在两个谷上的有效总磁场分别是 $B + B_s$ 和 $B - B_s$, 从而将在石墨烯中实现谷极化的朗道量子化^[123,125,133-139]. 另一方面, 由于赝磁场可以在纳米尺度内改变大小和方向^[121], 当赝磁场和真实磁场共同作用产生谷极化的朗道能级时, 如果能够通过改变晶格形变调控赝磁场的方向, 就可以进一步实现谷极化方向的翻转.

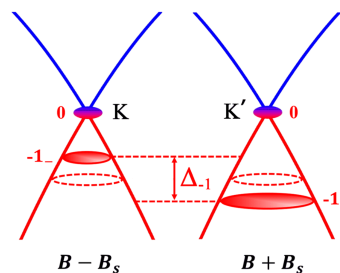


图 5^[23] 应变产生的赝磁场 B_s 和真实磁场 B 共同作用到石墨烯上产生谷极化朗道能级的原理示意图.

李思宇等^[24]在应变褶皱石墨烯上通过 STM 探测证实了上述想法, 即通过应变产生的赝磁场和真实磁场共同作用实现了非零朗道能级的谷极化及谷极化翻转(如图 6 所示). 图 6(a)为单层石墨烯褶皱结构的 STM 表征图, 这类褶皱结构在 CVD 法生长的样品上较为常见, 这是因为石墨烯与衬底的热膨胀系数不同, 在降温过程中石墨烯会受到衬底提供的水平方向的应力, 为了释放该应力, 石墨烯上将会产生应变褶皱结构^[23,130,131,140-142]. 在零场下, 沿 y 方向探测不同位置的 $dI/dV-V$ 谱线(图 6(b)), 谱上的特征峰对应赝磁场引入的赝朗道能级. 将赝朗道能级峰的位置与单层石墨烯朗道量子化公式进行拟合, 可以得到图 6(b)上方谱线对应的赝磁场大小为 0.73T, 下方谱线对应的赝磁场大小为 0.56T^[39-41,44,72,83]. 另外, 从图 6(b)的结果可以看

出,在褶皱上灰点标注位置的 dI/dV - V 谱线为 V 型谱线,没有出现朗道能级,对应赝磁场大小为零,将这部分赝磁场为零的过渡区域(小于 2nm)在图 6(a)中用白色虚线标了出来. 李思宇等^[24]对图 6(a)中的石墨烯褶皱结构进行了精细的晶格形变分

析后,发现褶皱上方和下方区域的形变均为沿 zigzag 方向的压应变. 由于褶皱上方和下方区域关于中间赝磁场为零的过渡区域镜像对称,因此褶皱上方和下方区域的赝磁场方向是相反的^[143](图 6(c)).

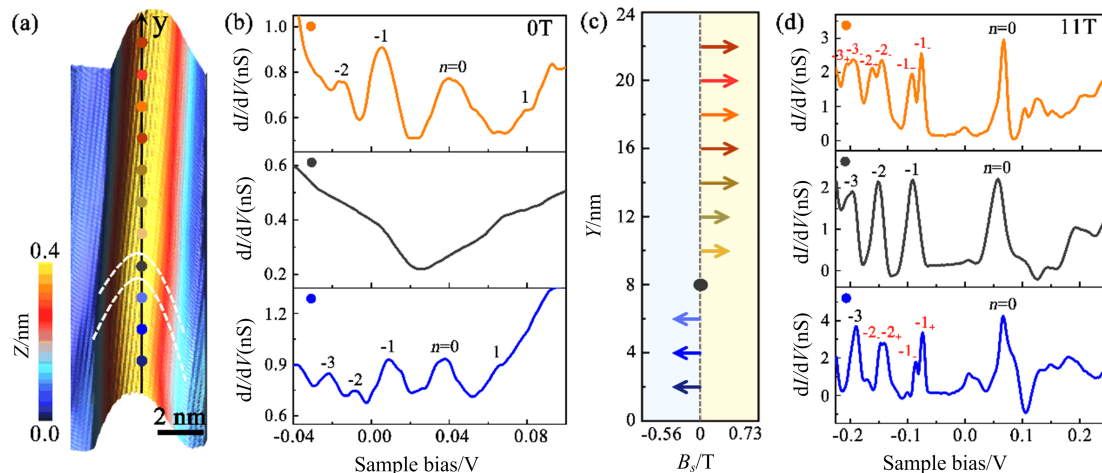


图 6^[24] (a)单层石墨烯褶皱结构的 STM 图,白色虚线标注的是中间过渡区域. (b)零场下,分别在褶皱石墨烯上方区域、过渡区域及下方区域采集的 STS 谱线. (c)沿 y 方向,褶皱石墨烯上不同位置的赝磁场. 箭头长短表示赝磁场大小,箭头方向表示赝磁场方向. (d)在外加磁场 11 T 时,分别在褶皱石墨烯上方区域、过渡区域及下方区域采集的 STS 谱线.

进一步外加强磁场,图 6(d)为 11T 磁场下该石墨烯褶皱的上方区域、过渡区域、下方区域的 dI/dV - V 谱线. 在褶皱上赝磁场为零的过渡区域,其磁场下的 dI/dV - V 谱线中出现了较好的朗道能级峰(图 45 中灰色的谱线);而在褶皱上方和下方应变区域的谱线中,非零的朗道能级($n = -1, -2, -3$ 朗道能级)则出现了明显的劈裂,该劈裂是由真实磁场和赝磁场共同作用导致的谷极化. 由于石墨烯零朗道能级的位置由狄拉克点的位置决定,不会受磁场影响,所以褶皱上方和下方应变区域的零朗道能级并没有发生劈裂. 另一方面,由于该褶皱上方和下方应变区域的赝磁场方向相反,所以外加磁场后,两个区域朗道能级谷极化的方向也是相反的,即出现了谷极化的翻转. 这里定义:当 K_+ 谷朗道能级能量大于 K_- 谷朗道能级能量时,产生的是正谷极化;当 K_+ 谷朗道能级能量小于 K_- 谷朗道能级能量时,产生的是负谷极化. 如图 6(d)所示,在赝磁场和真实磁场的共同作用下,褶皱上方应变区域产生了正谷极化的朗道能级,下方应变区域产生了负谷极化的朗道能级. 李思宇等^[24]的工作在单层褶皱石墨烯中通过非零朗道能级的劈裂探测到了由赝磁场和真实磁场共同作用导致的谷极化和谷翻转现象,也证实

了可以在纳米尺度内通过调控石墨烯的应变来实现对谷赝自旋的调控,这一结果对赝自旋调控的研究以及谷电子学的发展都具有重要的意义.

4 纳米尺度单电子精度探测对称性破缺态的方法

测量材料电子结构的简并度和对称性破缺态一直是凝聚态物理研究的热门课题之一. 通常我们利用输运手段测量材料电子结构的简并度和对称性破缺态,例如通过量子霍尔效应的量子霍尔平台就可以直接反映石墨烯中电子结构的简并度和一系列新奇的对称性破缺态. 但是,输运测量手段适用于探测样品的宏观性质,一般来说至少要求样品在微米大小的尺度内性质均一. 我们都知道材料中存在着原子尺度的缺陷、纳米尺度的应变褶皱和莫尔条纹等结构,这些结构将在纳米尺度内影响体系的简并度并产生新奇的对称性破缺态,那么如何在纳米尺度内对相应的对称性破缺态进行探测呢?

传统的输运测量手段并不能实现纳米尺度的测量. 最近,研究者们发展的 Edge-free 量子点法可以克服这一难题,它能够在纳米尺度、单电子精度上探测体系的简并度及对称性破缺态^[24,144-147]. 下面介绍

在石墨烯体系中 Edge-free 量子点法的测量原理. Edge-free 石墨烯量子点是由针尖电势和外加垂直磁场共同作用产生的^[24,144-147],其原理示意图如图 7(a)(b)所示. 外加垂直磁场使石墨烯区域产生朗道量子化,针尖电势将针尖下方石墨烯区域的朗道能级弯曲到周围区域朗道能级的能隙之中,针尖下方朗道能级中的电子受到周围区域能隙的限制作用,将会在针尖下方区域形成分立的束缚态,即在针尖下方形成了 Edge-free 石墨烯量子点,束缚态的简并度直接反映了石墨烯量子点区域的简并度(如图 7(c)(d)所示). 由于针尖下方形成的 Edge-free 石墨烯量子点电容很小,量子点中每填充一个电子都会受到已填充电子的库伦排斥能 E_C ,在扫描隧道谱

(STS)谱线上将形成一系列的充电峰. 当探测区域为本征的完美石墨烯时,这些充电峰是四个一组等间距排列的,反映本征石墨烯具有四重简并度,峰间距为电子库伦排斥能 E_C (图 7(c)). 当探测区域出现对称性破缺态时,例如出现谷极化或者自旋极化时,STS 谱线上探测到的四个一组的充电峰将不再等间距(图 7(d)),充电峰间距的变化能直接反映该区域谷劈裂或自旋劈裂的大小. 在这一方法中,STM 针尖的作用相当于一个可以移动的顶栅,通过移动针尖就可以利用 Edge-free 量子点法探测石墨烯中不同区域或不同结构的简并度及对称性破缺态,并且能够实现纳米尺度、单电子精度的测量^[24,144-147].

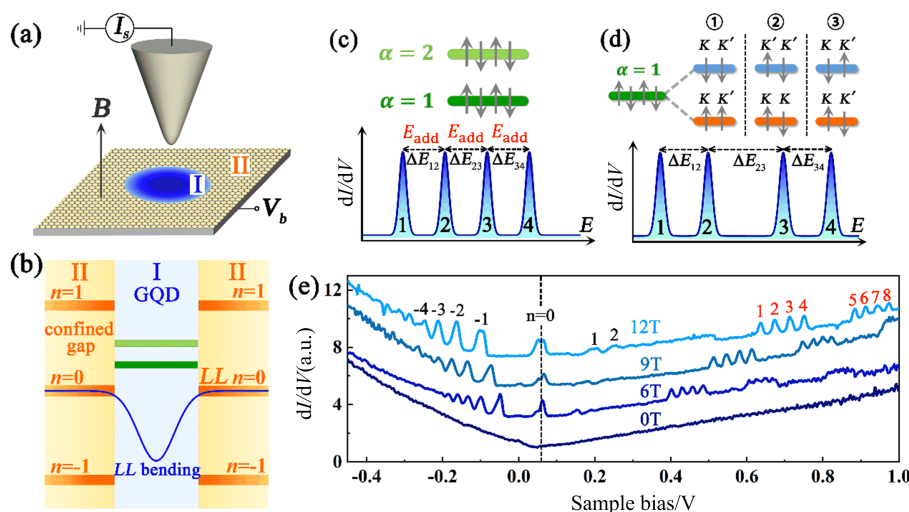


图 7^[146] (a)磁场下 STM 在平整单层石墨烯上进行实验探测的示意图. 单层石墨烯被划分为两个区域:针尖下方区域 I 以及周围区域 II. (b)针尖诱导的 Edge-free 石墨烯量子点的示意图. (c) 上方图:针尖诱导的 Edge-free 石墨烯量子点中束缚态的示意图. 下方图:在 dI/dV 谱线中四个一组等间距充电峰的示意图. (d) 上方图:Edge-free 石墨烯量子点中束缚态发生劈裂的示意图. 下方示意图:在 dI/dV 谱线中由对称性破缺态导致的两个一组的充电峰. (e) 在平整单层石墨烯上探测的不同磁场下的 dI/dV -V 谱线. 数字 1~8 标注了两组单电子隧穿峰.

将 Edge-free 量子点法首先应用于探测平整单层石墨烯区域,如图 7(e)所示,不同磁场下的 dI/dV -V 谱线中低偏压处均出现了很好的无质量狄拉克费米子朗道能级峰,而在高偏压处则出现了由 Edge-free 量子点产生的四个一组的单电子隧穿峰(用数字 1~8 标出). 单电子隧穿峰之间的偏压间距 ΔV_{tip} 与 Edge-free 量子点中受限态的能量间距 ΔE 之间的关系是: $\Delta E = \eta e \Delta V_{tip}$ ^[24,144-146]. 理论上, η 的数值是由针尖和量子点之间的电容 C_{tip} 以及量子点的总电容 C_{Σ} 决定的 ($\eta = C_{tip}/C_{\Sigma}$)^[144], η 通常为小于 1 的常数,不同的针尖、不同的探测区域会导致 η

的数值不同. 对图 7(e)中的单电子隧穿峰进行分析可以发现,每一组单电子隧穿峰之间的间距基本相等(例如第一组单电子隧穿峰之间的间距 $\Delta E_{12} = \Delta E_{23} = \Delta E_{34}$),这就证明实验探测的平整单层石墨烯区域的简并度为四,没有出现谷极化或者自旋极化^[144-146].

不同的课题组已经将 Edge-free 量子点法用于直观地探测不同石墨烯体系的对称性破缺态^[24,144-146]. 李思宇等^[24]将 Edge-free 量子点法应用于探测应变石墨烯中的谷极化和谷翻转现象. 在图 8(a)中的石墨烯褶皱区域,由于赝磁场和真实磁场

的共同作用使得非零朗道能级产生了谷极化和谷翻转. 针尖电势将针尖下方谷极化的 $N = -1$ 朗道能级弯曲到周围朗道能级的能隙中, 在针尖下方形成 edge-free 石墨烯量子点, 并产生谷极化的束缚态. 由于谷极化的存在, dI/dV - V 谱线中由束缚态形成的单电子隧穿峰将表现为两个一组的排布情况. 将四个单电子隧穿峰之间的能量间距分别定义为 ΔE_{12} 、 ΔE_{23} 、 ΔE_{34} , 并有 $\Delta E_{12} = E_c + E_z$, $\Delta E_{23} = E_c + E_v - E_z$, $\Delta E_{34} = E_c + E_z$ (其中 $E_z = g\mu_B B$ 为塞曼劈裂, 有效 g 因子 $g \approx 2$). 由此可以得到 $N = -1$ 朗道能级谷劈裂的大小 ΔE_v 为: $\Delta E_v = \Delta E_{23} - \Delta E_{12} + 2E_z$. 通过探测应变区域每一个位置的单电子隧穿峰, 可以得到每个位置谷劈裂的大小, 从而得到了谷劈裂大小在整个应变区域的分布图, 如图 8(b) 所示. 白色虚线标注的区域是谷劈裂为零的过渡区域, 在过渡区域赝磁场为零, 经过该过渡区域赝磁场方向以及谷极化的方向发生了翻转^[24]. 在该工作中, Edge-free 量子点法的测量进一步验证了可以在应变石墨烯中通过赝磁场和真实磁场的共同作用实现对谷赝自旋的调控. 他们也将 Edge-free 量子点法成功运用于探测石墨烯中单原子缺陷引入的对称性破缺态, 如图 8(c)(d) 所示. 单原子缺陷

(如单原子空位缺陷、氢吸附缺陷等) 的出现会打破石墨烯 AB 子格的对称性, 预期将在周围石墨烯区域引入对称性破缺电子态. 利用 Edge-free 量子点法, 李思宇等^[146] 探测到了单原子缺陷附近谷依赖的自旋劈裂, 并通过 STS 谱线上充电峰间距的变化得到了缺陷引入的自旋劈裂的大小. 进一步发挥 STM 空间分辨的优势, 他们系统测量了自旋劈裂在缺陷附近实空间的分布和衰减(图 8(d)). N. M. Freitag 等人^[145] 利用 Edge-free 量子点法对六方氮化硼(hBN)衬底上单层石墨烯的对称性破缺态进行了深入地研究. 由于 hBN 与石墨烯晶格常数相近, 该异质结体系会形成周期性的莫尔超晶格结构(如图 8(e) 所示). 通过 Edge-free 量子点法, 他们测量得到了谷劈裂大小在莫尔超晶格区域的分布情况, 如图 8(f) 所示. 图 8(f) 中谷劈裂分布的周期与莫尔超晶格的周期一致, 而且在同一个莫尔超晶格中出现了谷极化翻转的现象. 他们分析认为, 该现象是由于 hBN 衬底与单层石墨烯相互作用使得体系中出现了受莫尔超晶格周期调制的谷极化和谷翻转现象. 该工作证实 hBN 作为衬底与单层石墨烯形成的莫尔超晶格体系是研究谷调控等谷电子学性质的良好平台^[145].

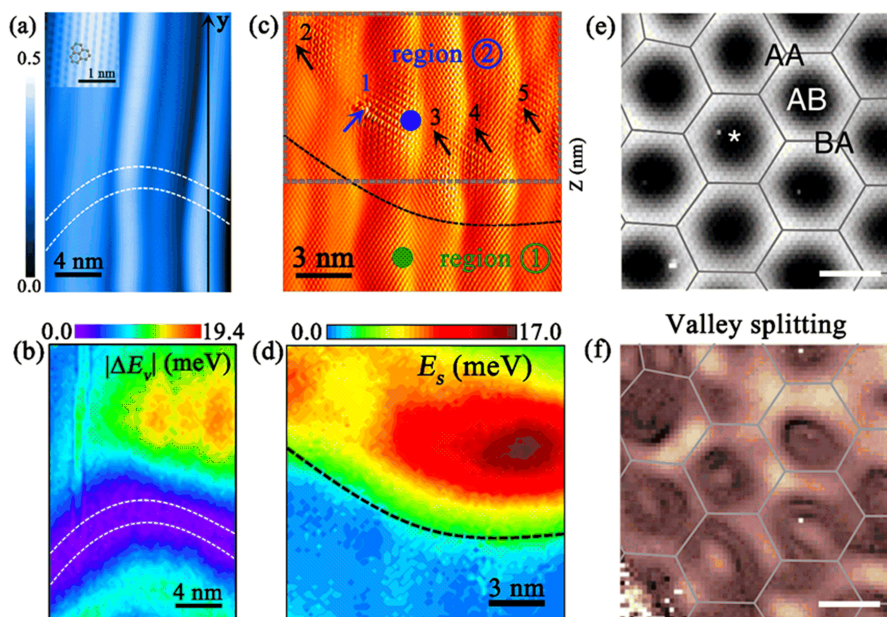


图 8 (a)Rh 衬底上褶皱单层石墨烯的 STM 图. (b)赝磁场和真实磁场共同作用导致的谷劈裂大小在图(a)褶皱区域的分布图, 白色虚线标注的是赝磁场为 0、谷劈裂为 0 的过渡区域^[24]. (c)具有单原子缺陷的单层石墨烯 STM 图. 将该区域划分为两个部分: 区域 1 为平整单层石墨烯区域, 区域 2 为具有多个单原子缺陷的区域. (d)谷依赖的自旋劈裂大小在图(c)区域中的分布图^[146]. (e)单层石墨烯放在 hBN 衬底上形成周期性莫尔超晶格的 STM 图, 标尺为 10 nm. (f)谷劈裂大小在图(e)区域的分布图^[145].

利用 Edge-free 量子点法在纳米尺度内探测材料的对称性破缺态不仅适用于研究石墨烯体系,也适用于研究其他二维材料体系.这一方法为在纳米尺度内探测二维材料的对称性破缺态提供了一个全新且直观的手段,未来将继续在二维材料基础物性的研究中发挥重要作用.

5 结 论

人们通过外加磁场、引入转角、堆垛层错和构筑应变结构等不同的手段,给石墨烯体系引入了丰富的对称性破缺量子物态.其中,平带相关强关联量子物态的研究以及谷赝自旋调控的研究近年来均取得了一系列突破性进展,本文对这两个领域的研究历

程、重要研究结果及其物理内涵进行了梳理和介绍.关联绝缘态、超导态、分数量子霍尔态等现象的发现不断揭示着石墨烯体系是研究各种强关联量子物态的良好平台;而在石墨烯中实现对谷赝自旋的调控,为下一步利用谷赝自旋自由度实现超低功耗谷电子学器件打下了坚实的基础.本文最后还介绍了一种在纳米尺度单电子精度探测二维材料对称性破缺态的普适方法——Edge-free 量子点法,该方法为今后研究二维材料体系的新奇量子物态提供了一种直观地探测手段.随着人们理解的深入以及测量手段的提高,可以预测未来在石墨烯这一简单的二维模型体系中还将发现更多令人惊喜的新奇量子物态.

参 考 文 献

- [1] A. H. Castro Neto, F. Guinea, N. M. R. Peres, K. S. Novoselov, A. K. Geim, *Reviews of Modern Physics* **81**, 109 (2009).
- [2] K. S. Novoselov, A. K. Geim, S. V. Morozov, D. Jiang, M. I. Katsnelson, I. V. Grigorieva, S. V. Dubonos, A. A. Firsov, *Nature* **438**, 197 (2005).
- [3] Y. Zhang, Y. W. Tan, H. L. Stormer, P. Kim, *Nature* **438**, 201 (2005).
- [4] A. K. Geim, K. S. Novoselov, *Nature materials* **6**, 183 (2007).
- [5] M. O. Goerbig, *Reviews of Modern Physics* **83**, 1193 (2011).
- [6] E. Y. Andrei, G. Li, X. Du, *Reports on progress in physics. Physical Society* **75**, 056501 (2012).
- [7] S. Das Sarma, S. Adam, E. H. Hwang, E. Rossi, *Reviews of Modern Physics* **83**, 407 (2011).
- [8] A. V. Shytov, M. S. Rudner, L. S. Levitov, *Physical review letters* **101**, 156804 (2008).
- [9] A. F. Young, P. Kim, *Nature Physics* **5**, 222 (2009).
- [10] Y. Wang, V. W. Brar, A. V. Shytov, Q. Wu, W. Regan, H.-Z. Tsai, A. Zettl, L. S. Levitov, M. F. Crommie, *Nature Physics* **8**, 653 (2012).
- [11] Y. Wang, D. Wong, A. V. Shytov, V. W. Brar, S. Choi, Q. Wu, H. Z. Tsai, W. Regan, A. Zettl, R. K. Kawakami, S. G. Louie, L. S. Levitov, M. F. Crommie, *Science* **340**, 734 (2013).
- [12] J. Mao, Y. Jiang, D. Moldovan, G. Li, K. Watanabe, T. Taniguchi, M. R. Masir, F. M. Peeters, E. Y. Andrei, *Nature Physics* **12**, 545 (2016).
- [13] C. Gutiérrez, C.-J. Kim, L. Brown, T. Schiros, D. Nordlund, Edward B. Lochocki, K. M. Shen, J. Park, A. N. Papatthy, *Nature Physics* **12**, 950 (2016).
- [14] H. Gonzalez-Herrero, J. M. Gomez-Rodriguez, P. Mallet, M. Moaied, J. J. Palacios, C. Salgado, M. M. Ugeda, J. Y. Veuillen, F. Yndurain, I. Brihuega, *Science* **352**, 437 (2016).
- [15] Y. Zhang, S. Y. Li, H. Huang, W. T. Li, J. B. Qiao, W. X. Wang, L. J. Yin, K. K. Bai, W. Duan, L. He, *Physical review letters* **117**, 166801 (2016).
- [16] Y. Zhang, T. T. Tang, C. Girit, Z. Hao, M. C. Martin, A. Zettl, M. F. Crommie, Y. R. Shen, F. Wang, *Nature* **459**, 820 (2009).
- [17] L. Ju, Z. Shi, N. Nair, Y. Lv, C. Jin, J. Velasco, Jr., C. Ojeda-Aristizabal, H. A. Bechtel, M. C. Martin, A. Zettl, J. Analytis, F. Wang, *Nature* **520**, 650 (2015).
- [18] L. J. Yin, H. Jiang, J. B. Qiao, L. He, *Nature communications* **7**, 11760 (2016).
- [19] L. Jiang, Z. Shi, B. Zeng, S. Wang, J. H. Kang, T. Joshi, C. Jin, L. Ju, J. Kim, T. Lyu, Y. R. Shen, M. Crommie, H. J. Gao, F. Wang, *Nature materials* **15**, 840 (2016).
- [20] G. Chen, A. L. Sharpe, P. Gallagher, I. T. Rosen, E. J. Fox, L. Jiang, B. Lyu, H. Li, K. Watanabe, T. Taniguchi, J. Jung, Z. Shi, D. Goldhaber-Gordon, Y. Zhang, F. Wang, *Nature* **572**, 215 (2019).
- [21] N. Levy, S. Burke, K. Meaker, M. Panlasigui, A. Zettl, F. Guinea, A. C. Neto, M. Crommie, *Science* **329**, 544 (2010).
- [22] N. N. Klimov, S. Jung, S. Zhu, T. Li, C. A. Wright, S.

- D. Solares, D. B. Newell, N. B. Zhitenev, J. A. Strosio, *Science* **336**, 1557 (2012).
- [23] S.-Y. Li, K.-K. Bai, L.-J. Yin, J.-B. Qiao, W.-X. Wang, L. He, *Physical Review B* **92**, 245302 (2015).
- [24] S.-Y. Li, Y. Su, Y.-N. Ren, L. He, *Physical review letters* **124** (2020).
- [25] P. Jia, W. Chen, J. Qiao, M. Zhang, X. Zheng, Z. Xue, R. Liang, C. Tian, L. He, Z. Di, X. Wang, *Nature communications* **10**, 3127 (2019).
- [26] W. Yan, M. Liu, R. F. Dou, L. Meng, L. Feng, Z. D. Chu, Y. Zhang, Z. Liu, J. C. Nie, L. He, *Physical review letters* **109**, 126801 (2012).
- [27] I. Brihuega, P. Mallet, H. Gonzalez-Herrero, G. Trambly de Laissardiere, M. M. Ugeda, L. Magaud, J. M. Gomez-Rodriguez, F. Yndurain, J. Y. Veuillen, *Physical review letters* **109**, 196802 (2012).
- [28] L.-J. Yin, J.-B. Qiao, W.-J. Zuo, W.-T. Li, L. He, *Physical Review B* **92**, 081406 (2015).
- [29] Y. Cao, V. Fatemi, A. Demir, S. Fang, S. L. Tomarken, J. Y. Luo, J. D. Sanchez-Yamagishi, K. Watanabe, T. Taniguchi, E. Kaxiras, R. C. Ashoori, P. Jarillo-Herrero, *Nature* **556**, 80 (2018).
- [30] Y. Cao, V. Fatemi, S. Fang, K. Watanabe, T. Taniguchi, E. Kaxiras, P. Jarillo-Herrero, *Nature* **556**, 43 (2018).
- [31] X. Du, I. Skachko, F. Duerr, A. Luican, E. Y. Andrei, *Nature* **462**, 192 (2009).
- [32] K. I. Bolotin, F. Ghahari, M. D. Shulman, H. L. Stormer, P. Kim, *Nature* **462**, 196 (2009).
- [33] Y. J. Song, A. F. Otte, Y. Kuk, Y. Hu, D. B. Torrance, P. N. First, W. A. de Heer, H. Min, S. Adam, M. D. Stiles, A. H. MacDonald, J. A. Strosio, *Nature* **467**, 185 (2010).
- [34] A. A. Zibrov, E. M. Spanton, H. Zhou, C. Kometter, T. Taniguchi, K. Watanabe, A. F. Young, *Nature Physics* **14**, 930 (2018).
- [35] P. Stepanov, S. Che, D. Shcherbakov, J. Yang, R. Chen, K. Thilagar, G. Voigt, M. W. Bockrath, D. Smirnov, K. Watanabe, T. Taniguchi, R. K. Lake, Y. Barlas, A. H. MacDonald, C. N. Lau, *Nature Physics* **14**, 907 (2018).
- [36] A. L. Sharpe, E. J. Fox, A. W. Barnard, J. Finney, K. Watanabe, T. Taniguchi, M. A. Kastner, D. Goldhaber-Gordon, *Science* **365**, 605 (2019).
- [37] M. Yankowitz, S. Chen, H. Polshyn, Y. Zhang, K. Watanabe, T. Taniguchi, D. Graf, A. F. Young, C. R. Dean, *Science* **363**, 1059 (2019).
- [38] X. Lu, P. Stepanov, W. Yang, M. Xie, M. A. Aamir, I. Das, C. Urgell, K. Watanabe, T. Taniguchi, G. Zhang, A. Bachtold, A. H. MacDonald, D. K. Efetov, *Nature* **574**, 653 (2019).
- [39] L.-J. Yin, S.-Y. Li, J.-B. Qiao, J.-C. Nie, L. He, *Physical Review B* **91**, 115405 (2015).
- [40] W.-X. Wang, L.-J. Yin, J.-B. Qiao, T. Cai, S.-Y. Li, R.-F. Dou, J.-C. Nie, X. Wu, L. He, *Physical Review B* **92**, 165420 (2015).
- [41] D. L. Miller, K. D. Kubista, G. M. Rutter, M. Ruan, W. A. De Heer, M. Kindermann, P. N. First, J. A. Strosio, *Nature Physics* **6**, 811 (2010).
- [42] R. Gorbachev, J. Song, G. Yu, A. Kretinin, F. Withers, Y. Cao, A. Mishchenko, I. Grigorieva, K. Novoselov, L. Levitov, *Science* **346**, 448 (2014).
- [43] Y.-N. Ren, Y. Zhang, Y.-W. Liu, L. He, *Chinese Physics B* **29**, 117303 (2020).
- [44] D. L. Miller, K. D. Kubista, G. M. Rutter, M. Ruan, W. A. de Heer, P. N. First, J. A. Strosio, *Science* **324**, 924 (2009).
- [45] G. Li, A. Luican, E. Y. Andrei, *Physical review letters* **102**, 176804 (2009).
- [46] Y. Zhang, Z. Jiang, J. P. Small, M. S. Purewal, Y. W. Tan, M. Fazlollahi, J. D. Chudow, J. A. Jaszczak, H. L. Stormer, P. Kim, *Physical review letters* **96**, 136806 (2006).
- [47] L. Zhang, Y. Zhang, M. Khodas, T. Valla, I. A. Zaliznyak, *Physical review letters* **105**, 046804 (2010).
- [48] Z. Jiang, Y. Zhang, H. L. Stormer, P. Kim, *Physical review letters* **99**, 106802 (2007).
- [49] A. F. Young, C. R. Dean, L. Wang, H. Ren, P. Cadden-Zimansky, K. Watanabe, T. Taniguchi, J. Hone, K. L. Shepard, P. Kim, *Nature Physics* **8**, 550 (2012).
- [50] K. Nomura, A. H. MacDonald, *Physical review letters* **96**, 256602 (2006).
- [51] K. Yang, S. D. Sarma, A. H. MacDonald, *Physical Review B* **74**, 075423 (2006).
- [52] I. F. Herbut, *Physical Review B* **75**, 165411 (2007).
- [53] J. Alicea, M. P. Fisher, *Physical Review B* **74**, 075422 (2006).
- [54] D. A. Abanin, P. A. Lee, L. S. Levitov, *Physical review letters* **96**, 176803 (2006).
- [55] H. A. Fertig, L. Brey, *Physical review letters* **97**, 116805 (2006).
- [56] D. A. Abanin, K. S. Novoselov, U. Zeitler, P. A. Lee, A. K. Geim, L. S. Levitov, *Physical review letters* **98**, 196806 (2007).
- [57] E. Shimshoni, H. A. Fertig, G. V. Pai, *Physical review letters* **102**, 206408 (2009).
- [58] M. Kharitonov, *Physical Review B* **85**, 155439 (2012).
- [59] M. Kharitonov, *Physical Review B* **86**, 075450 (2012).
- [60] K. Nomura, S. Ryu, D. H. Lee, *Physical review letters* **103**, 0181 •

- 216801 (2009).
- [61] I. Sodemann, A. H. MacDonald, *Physical review letters* **112**, 126804 (2014).
- [62] V. P. Gusynin, V. A. Miransky, S. G. Sharapov, I. A. Shovkovy, *Physical Review B* **74** (2006).
- [63] C. T. Ke, P. E. Lammert, V. H. Crespi, J. K. Jain, *Physical Review B* **74**, 235417 (2006).
- [64] V. M. Apalkov, T. Chakraborty, *Physical review letters* **97**, 126801 (2006).
- [65] N. Peres, F. Guinea, A. C. Neto, *Physical Review B* **73**, 125411 (2006).
- [66] M. Goerbig, N. Regnault, *Physical Review B* **75**, 241405 (2007).
- [67] C. R. Dean, A. F. Young, P. Cadden-Zimansky, L. Wang, H. Ren, K. Watanabe, T. Taniguchi, P. Kim, J. Hone, K. L. Shepard, *Nature Physics* **7**, 693 (2011).
- [68] B. E. Feldman, B. Krauss, J. H. Smet, A. Yacoby, *Science* **337**, 1196 (2012).
- [69] F. Amet, A. J. Bestwick, J. R. Williams, L. Balicas, K. Watanabe, T. Taniguchi, D. Goldhaber-Gordon, *Nature communications* **6**, 5838 (2015).
- [70] F. Amet, J. R. Williams, K. Watanabe, T. Taniguchi, D. Goldhaber-Gordon, *Physical review letters* **110**, 216601 (2013).
- [71] B. Hunt, J. Sanchez-Yamagishi, A. Young, M. Yankowitz, B. J. LeRoy, K. Watanabe, T. Taniguchi, P. Moon, M. Koshino, P. Jarillo-Herrero, *Science* **340**, 1427 (2013).
- [72] S.-Y. Li, Y. Zhang, L.-J. Yin, L. He, *Physical Review B* **100**, 085437 (2019).
- [73] I. A. Luk'yanchuk, A. M. Bratkovsky, *Physical review letters* **100**, 176404 (2008).
- [74] J.-N. Fuchs, P. Lederer, *Physical review letters* **98**, 016803 (2007).
- [75] C.-Y. Hou, C. Chamon, C. Mudry, *Physical review letters* **98**, 186809 (2007).
- [76] S. Ryu, C. Mudry, C.-Y. Hou, C. Chamon, *Physical Review B* **80**, 205319 (2009).
- [77] B. Roy, M. P. Kennett, S. D. Sarma, *Physical Review B* **90**, 201409 (2014).
- [78] C. Gutiérrez, C.-J. Kim, L. Brown, T. Schiros, D. Nordlund, E. B. Lochocki, K. M. Shen, J. Park, A. N. Pasupathy, *Nature Physics* **12**, 950 (2016).
- [79] J. Gonzalez, *Physical Review B* **78**, 205431 (2008).
- [80] J. M. Lopes Dos Santos, N. M. Peres, A. H. Castro Neto, *Physical review letters* **99**, 256802 (2007).
- [81] G. Li, A. Luican, J. M. B. Lopes dos Santos, A. H. Castro Neto, A. Reina, J. Kong, E. Y. Andrei, *Nature Physics* **6**, 109 (2009).
- [82] R. Bistritzer, A. H. MacDonald, *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America* **108**, 12233 (2011).
- [83] A. Luican, G. Li, A. Reina, J. Kong, R. R. Nair, K. S. Novoselov, A. K. Geim, E. Y. Andrei, *Physical review letters* **106**, 126802 (2011).
- [84] L.-J. Yin, J.-B. Qiao, W.-X. Wang, W.-J. Zuo, W. Yan, R. Xu, R.-F. Dou, J.-C. Nie, L. He, *Physical Review B* **92**, 201408 (2015).
- [85] G. Tarnopolsky, A. J. Kruchkov, A. Vishwanath, *Physical review letters* **122**, 106405 (2019).
- [86] S.-Y. Li, K.-Q. Liu, L.-J. Yin, W.-X. Wang, W. Yan, X.-Q. Yang, J.-K. Yang, H. Liu, H. Jiang, L. He, *Physical Review B* **96**, 155416 (2017).
- [87] M. Serlin, C. Tschirhart, H. Polshyn, Y. Zhang, J. Zhu, K. Watanabe, T. Taniguchi, L. Balents, A. Young, *Science* **367**, 900 (2020).
- [88] J. González, T. Stauber, *Physical review letters* **122** (2019).
- [89] B. Lian, Z. Wang, B. A. Bernevig, *Physical review letters* **122**, 257002 (2019).
- [90] C.-C. Liu, L.-D. Zhang, W.-Q. Chen, F. Yang, *Physical review letters* **121**, 217001 (2018).
- [91] H. C. Po, L. Zou, A. Vishwanath, T. Senthil, *Physical Review X* **8**, 031089 (2018).
- [92] F. Wu, A. H. MacDonald, I. Martin, *Physical review letters* **121**, 257001 (2018).
- [93] L. Huder, A. Artaud, T. Le Quang, G. T. de Laissardiére, A. G. M. Jansen, G. Lapertot, C. Chapelier, V. T. Renard, *Physical review letters* **120**, 156405 (2018).
- [94] M. Szendrői, A. Pálkás, P. Süle, Z. Osváth, *Physical Review B* **100** (2019).
- [95] J.-B. Qiao, L.-J. Yin, L. He, *Physical Review B* **98** (2018).
- [96] Y. Xie, B. Lian, B. Jäck, X. Liu, C.-L. Chiu, K. Watanabe, T. Taniguchi, B. A. Bernevig, A. Yazdani, *Nature* **572**, 101 (2019).
- [97] A. Kerelsky, L. J. McGilly, D. M. Kennes, L. Xian, M. Yankowitz, S. Chen, K. Watanabe, T. Taniguchi, J. Hone, C. Dean, A. Rubio, A. N. Pasupathy, *Nature* **572**, 95 (2019).
- [98] Y. Jiang, X. Lai, K. Watanabe, T. Taniguchi, K. Haule, J. Mao, E. Y. Andrei, *Nature* **573**, 91 (2019).
- [99] Y. Choi, J. Kemmer, Y. Peng, A. Thomson, H. Arora, R. Polski, Y. Zhang, H. Ren, J. Alicea, G. Refael, F. von Oppen, K. Watanabe, T. Taniguchi, S. Nadj-Perge, *Nature Physics* **15**, 1174 (2019).
- [100] E. Codecido, Q. Wang, R. Koester, S. Che, H. Tian, R. Lv, S. Tran, K. Watanabe, T. Taniguchi, F. Zhang, M. Bockrath, C. N. Lau, *Science Advances* **5**, 9770 (2019).

- [101] Y.-W. Liu, J.-B. Qiao, C. Yan, Y. Zhang, S.-Y. Li, L. He, *Physical Review B* **99** (2019).
- [102] M. Xie, A. H. MacDonald, *arXiv preprint arXiv:1812.04213* (2018).
- [103] Z. Song, Z. Wang, W. Shi, G. Li, C. Fang, B. A. Bernevig, *Physical review letters* **123**, 036401 (2019).
- [104] B. Lian, F. Xie, B. A. Bernevig, *arXiv preprint arXiv:1811.11786* (2018).
- [105] Y.-H. Zhang, D. Mao, T. Senthil, *Physical Review Research* **1**, 033126 (2019).
- [106] N. Bultinck, S. Chatterjee, M. P. Zaletel, *arXiv preprint arXiv:1901.08110* (2019).
- [107] N. Bultinck, E. Khalaf, S. Liu, S. Chatterjee, A. Vishwanath, M. P. Zaletel, *arXiv preprint arXiv:1911.02045* (2019).
- [108] J. Liu, X. Dai, *arXiv preprint arXiv:1911.03760* (2019).
- [109] J. Liu, Z. Ma, J. Gao, X. Dai, *Physical Review X* **9**, 031021 (2019).
- [110] S.-Y. Li, Y. Zhang, Y.-N. Ren, J. Liu, X. Dai, L. He, *Physical Review B* **102**, 121406 (2020).
- [111] L.-J. Yin, L.-J. Shi, S.-Y. Li, Y. Zhang, Z.-H. Guo, L. He, *Physical review letters* **122**, 146802 (2019).
- [112] C. Shen, Y. Chu, Q. Wu, N. Li, S. Wang, Y. Zhao, J. Tang, J. Liu, J. Tian, K. Watanabe, *Nature Physics* **16**, 520 (2020).
- [113] Y. Cao, D. Rodan-Legrain, O. Rubies-Bigorda, J. M. Park, K. Watanabe, T. Taniguchi, P. Jarillo-Herrero, *Nature*, **1** (2020).
- [114] D. Xiao, W. Yao, Q. Niu, *Physical review letters* **99**, 236809 (2007).
- [115] J. Li, K. Wang, K. J. McFaul, Z. Zern, Y. Ren, K. Watanabe, T. Taniguchi, Z. Qiao, J. Zhu, *Nature nanotechnology* **11**, 1060 (2016).
- [116] J. Li, R.-X. Zhang, Z. Yin, J. Zhang, K. Watanabe, T. Taniguchi, C. Liu, J. Zhu, *Science* **362**, 1149 (2018).
- [117] M. A. H. Vozmediano, M. I. Katsnelson, F. Guinea, *Physics Reports* **496**, 109 (2010).
- [118] F. De Juan, J. L. Manes, M. A. Vozmediano, *Physical Review B* **87**, 165131 (2013).
- [119] F. Guinea, M. I. Katsnelson, A. K. Geim, *Nature Physics* **6**, 30 (2009).
- [120] F. Guinea, B. Horovitz, P. Le Doussal, *Physical Review B* **77**, 205421 (2008).
- [121] F. Guinea, M. Katsnelson, M. Vozmediano, *Physical Review B* **77**, 075422 (2008).
- [122] F. Guinea, A. Geim, M. Katsnelson, K. Novoselov, *Physical Review B* **81**, 035408 (2010).
- [123] T. Low, F. Guinea, *Nano letters* **10**, 3551 (2010).
- [124] G. Verbiest, S. Brinker, C. Stampfer, *Physical Review B* **92**, 075417 (2015).
- [125] M. Settnes, S. R. Power, A.-P. Jauho, *Physical Review B* **93**, 035456 (2016).
- [126] N. C. Yeh, M. L. Teague, S. Yeom, B. L. Standley, R. T. P. Wu, D. A. Boyd, M. W. Bockrath, *Surface Science* **605**, 1649 (2011).
- [127] H. Yan, Y. Sun, L. He, J.-C. Nie, M. H. Chan, *Physical Review B* **85**, 035422 (2012).
- [128] D. Guo, T. Kondo, T. Machida, K. Iwatake, S. Okada, J. Nakamura, *Nature communications* **3**, 1068 (2012).
- [129] J. Lu, A. H. Neto, K. P. Loh, *Nature communications* **3**, 823 (2012).
- [130] L. Meng, W.-Y. He, H. Zheng, M. Liu, H. Yan, W. Yan, Z.-D. Chu, K. Bai, R.-F. Dou, Y. Zhang, *Physical Review B* **87**, 205405 (2013).
- [131] W. Yan, W. Y. He, Z. D. Chu, M. Liu, L. Meng, R. F. Dou, Y. Zhang, Z. Liu, J. C. Nie, L. He, *Nature communications* **4**, 2159 (2013).
- [132] Y. Liu, J. N. B. Rodrigues, Y. Z. Luo, L. Li, A. Carvalho, M. Yang, E. Laksono, J. Lu, Y. Bao, H. Xu, S. J. R. Tan, Z. Qiu, C. H. Sow, Y. P. Feng, A. H. C. Neto, S. Adam, J. Lu, K. P. Loh, *Nature nanotechnology* **13**, 828 (2018).
- [133] B. Roy, *Physical Review B* **84**, 035458 (2011).
- [134] D. Abanin, D. Pesin, *Physical review letters* **109**, 066802 (2012).
- [135] B. Uchoa, Y. Barlas, *Physical review letters* **111**, 046604 (2013).
- [136] B. Roy, Z.-X. Hu, K. Yang, *Physical Review B* **87**, 121408 (2013).
- [137] D.-B. Zhang, G. Seifert, K. Chang, *Physical review letters* **112**, 096805 (2014).
- [138] G. Wakker, R. P. Tiwari, M. Blaauboer, *Physical Review B* **84**, 195427 (2011).
- [139] B. Amorim, A. Cortijo, F. De Juan, A. Grushin, F. Guinea, A. Gutiérrez-Rubio, H. Ochoa, V. Parente, R. Roldán, P. San-Jose, *Physics Reports* **617**, 1 (2016).
- [140] K.-K. Bai, Y. Zhou, H. Zheng, L. Meng, H. Peng, Z. Liu, J.-C. Nie, L. He, *Physical review letters* **113**, 086102 (2014).
- [141] K.-K. Bai, Y.-C. Wei, J.-B. Qiao, S.-Y. Li, L.-J. Yin, W. Yan, J.-C. Nie, L. He, *Physical Review B* **92**, 121405 (2015).
- [142] L. Meng, Y. Su, D. Geng, G. Yu, Y. Liu, R.-F. Dou, J.-C. Nie, L. He, *Applied Physics Letters* **103**, 251610 (2013).
- [143] S. Zhu, J. A. Stroscio, T. Li, *Physical review letters* **115**,

245501 (2015).

- [144] N. M. Freitag, L. A. Chizhova, P. Nemes-Incze, C. R. Woods, R. V. Gorbachev, Y. Cao, A. K. Geim, K. S. Novoselov, J. Burgdorfer, F. Libisch, M. Morgenstern, *Nano letters* **16**, 5798 (2016).
- [145] N. M. Freitag, T. Reisch, L. A. Chizhova, P. Nemes-Incze, C. Holl, C. R. Woods, R. V. Gorbachev, Y. Cao, A.

K. Geim, K. S. Novoselov, *Nature nanotechnology* **13**, 392 (2018).

- [146] S.-Y. Li, Y.-N. Ren, Y.-W. Liu, M.-X. Chen, H. Jiang, L. He, *2D Materials* **6**, 031005 (2019).
- [147] Y.-W. Liu, Z. Hou, S.-Y. Li, Q.-F. Sun, L. He, *Physical review letters* **124**, 166801 (2020).