

量子多体中的呐喊与彷徨之九 转角石墨烯的三昧

孟子杨[†]

2021-05-01 收到

[†] email: zymeng@iphy.ac.cn

DOI: 10.7693/wl20210508

1 引子

三昧是佛教里的话，是说修行的人能够止息杂念，心神平静，进入禅定，一窥事物的真谛。我们这些俗人，又生活在俗世，每天都在吃喝拉撒中辗转，应付尚且不足，禅定更不可及，离三昧境盖益远矣。大先生有篇著名的文章，叫《世故三昧》，很短，很有趣，把在人间难得三昧的窘境和苦境写得通透，感兴趣的读者可以找来看看，一定强过阅读下面带着公式和图表的物理八股。

不过倘若有读者总不死心，非要看看笔者在这里要讲的三昧和转角石墨烯有啥关系，那么当然欢迎，但还是要提醒诸君好自为之，此三昧非彼三昧，“他人就是地狱”，诸位还是怀着不指望得到什么领悟的心态批判地看，也许能有所得，于人于己都不要期望太高，正合目下这个热热闹闹的时代中处世法的精义。总之再说一遍，此处如果想回头，还来得及。再往下看，只能后果自负了。

2 凝聚态物理版的阿拉丁神灯

我们都尊敬和喜爱的凝聚态物理达人戴希老师，对于转角石墨烯的问题有这样一个比喻，说是“凝聚态物理版的阿拉丁神灯的故事”^[1]，颇得三昧。为什么这么说呢？大家可以想想，在这样的二维

材料体系中，不过才最近几年的时间，人们已经可以通过精准的门电压、转角、应变、垂直电场、外磁场等方式进行调控，实现了凝聚态物理学中大部分的新奇物态，包括二维(狄拉克)电子气、莫特绝缘体、拓扑绝缘体、超导、轨道(谷)铁磁、量子反常霍尔效应(陈绝缘体)，甚至还有好事者预测了量子自旋液体——虽然这个可能扯得有点远。从理论上讲，魔角所带来的平带和平带的“脆弱拓扑性质”，还有费米能附近高态密度所天然伴随的强关联效应，让研究强关联量子多体系统的人们看到了一个关联与拓扑效应结合存在的实例。而转角石墨烯相图中随着载流子浓度的调节，从库仑关联绝缘相到超导相的变化，和高温超导材料相图有很大的相似性，更是给了研究和关心过量子多体问题的物理学家们弗洛伊德级别的心理暗示，大家都禁不住摩拳擦掌跃跃欲试，想把之前在铜基超导中发明的种种成功和不成功的套路，都拿到此处再试一次，以补偿童年的挫折，宽慰一下埋藏在心底的俄狄浦斯情结，说不定这次还真算对了呢？

可见，不论是从二维材料的实验进展，还是从拓扑与关联的量子多体理论框架，还有从莫特绝缘体到关联金属态再到超导体的暗通款曲的力比多暗示，人们只是撕一撕、转一转、粘一粘石墨这种

地球上俯拾皆是材料就能将上述五花八门的现象都发掘了出来(当然实际情况不是这么简单)，这么优异的系统，真是神仙(或者魔鬼)送给人类的宝物，所以称之为阿拉丁神灯召唤而来的材料确实不算夸张。

3 魔鬼也不慷慨

不过，虽然热闹如此，研究中实质性的进展还得靠着全世界的凝聚态物理学实验、理论工作者们，一天天的辛勤劳动和一年年扎实的理论、计算和实验技术的积累来勉力推动。成果很多(paper 也很多)，但是问题和困难更多。笔者不懂实验，不敢乱说话，不过大家可以看到，到目前为止主要的实验结果还是来自输运(电阻)测量，已经三四年过去了，传统凝聚态量子多体问题中的动力学(谱学)和热力学测量仍是付之阙如，从样品制备到实验设计和实施的困难可想而知。

从理论上讲，最基本的困难就是系统中自由度太多，相互作用复杂，无法严格处理。这个可以从单层石墨烯说起，单层石墨烯是蜂窝晶格，在实空间每个原胞有A, B两个子格点，每个格点上的电子可以有自旋上、下两个自由度，所以说单层石墨烯实空间模型的基本单位(原胞)包含(2个子格点)×(2个自旋)=(4个量子自由度)。为了研究此处的相互作用问题，人们要做的

就是把电子放在这样的晶格模型上，求解如是问题的多体哈密顿量，研究在如此的晶格上，满足量子力学规律的电子在彼此的影响下可以产生出什么样的物质形态，比如狄拉克半金属、量子(反常、自旋)霍尔效应、反铁磁莫特绝缘体、Gross—Neveu 量子相变等等有趣的问题。可以告诉大家的是，对于用半满的 Hubbard 模型描述的单层石墨烯蜂窝晶格，人们目前可以通过量子多体蒙特卡洛计算，得到 $36 \times 36 \times 2 \sim 2500$ 个电子系统的严格的性质，不过这样的结果，已经需要动用到天河超级计算机进行数个月的大规模并行计算。

好的，那么我们再来看转角石墨烯。两层石墨烯堆叠然后转角，造成的直接效果就是实空间的原胞扩大。如图 1 所示的结构，上下两层石墨烯中 AA, AB, BA 子格重叠的地方仍然可以看到周期性的排列，形成了所谓的摩尔图案 (Moiré pattern)。但此处的一个原胞(就是图中黑色的平行四边形)包括了 $N=868$ 个碳原子格点，那么考虑每个碳原子上只有一个电子的情况，三个这样的原胞，就已经达到了上文所说的单层石墨烯多体模型能够计算的极限了。更不用说此图中的转角其实是 3.89° ，真正实验中，也就是戴希老师所说的如阿拉丁神灯般的“魔角”石墨烯，两层之间的转角在 1° 左右，角度越小，原胞越大，所以其实在“魔角”的情况下，严格的量子多体计算是连一个原胞都处理不了的。这就是问题的困难之处，可见魔鬼对人类其实也没有那么慷慨。

为之奈何，求诸三昧。严格到每个碳原子的微观多体模型看来是没戏了，那么我们还可以试试理论

物理学家常用的套路——有效模型。就是考虑从每个转角石墨烯的原胞中成千上万的自由度中提炼出几个有效的量子自由度，用轨道(orbital)、谷(valley)、能带(band)、电子填充(filling)、自旋(spin)等等有效的量子数来描述，然

后建立起关于这些有效自由度的量子多体模型，计算和分析其性质，再与实验比较。这样虽然仍很困难，但是和上文所说的需要对角化一个天文数字维度的哈密顿量问题相比，还是稍微简化了一些。实际上，到目前为止的理论模型研究，也确实采用了这个方式，一点点往前推进。目前这方面的研究随着转角石墨烯的实验进展十分活跃，文献已然汗牛充栋，而且有很多不同解析、数值、近似程度等等的细分，不是这篇小文能够讲得清楚的。下面笔者只打算从个体亲历的角度，讲讲两个尝试性的工作^[3, 4]，涵盖两个实空间有效模型的量子多体计算结果，和一些从这些结果所引出的思考。更深的问题，笔者也还在学习。

4 我们的三昧

虽然现在理论家们说起转角石墨烯的模型大部分都从动量空间开始，而且早期分析转角造成平带的工作也确实就是这样的连续模型^[5, 6]，但对于饱受量子多体晶格模型计算训练的从业人员来说，比如蒙蒙卡和张量量(详见《物理》2020 年第 11 期本专栏文章《蒙蒙卡和张

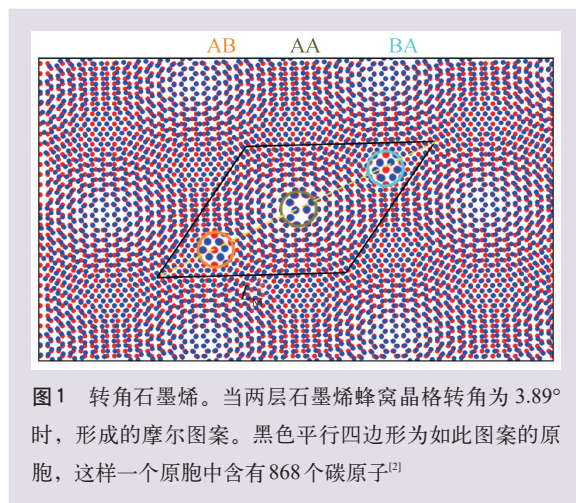


图 1 转角石墨烯。当两层石墨烯蜂窝晶格转角为 3.89° 时，形成的摩尔图案。黑色平行四边形为如此图案的原胞，这样一个原胞中含有 868 个碳原子^[2]

量量》)，大家习惯的出发点，往往还是如 square lattice Hubbard 模型这样的实空间相互作用模型。但是转角石墨烯毕竟和 Hubbard 模型不同，此处材料中的平带就意味着当把相互作用投影到平带上的时候，有效自由度之间的相互作用，其实是很长程的，而不是像 Hubbard 模型那样简化到只有 on-site 的库仑排斥。

为了描述这样的现象，目前相对被接受的实空间模型是 Kang—Vafek 模型，此处的 Kang 是苏州大学的康健教授。这个模型如图 2(a) 所示，考虑系统有效的自由度仍生活在石墨烯一般的蜂窝晶格上，系统的哈密顿量包含动能和相互作用能量两部分， $H = H_0 + H_U$ ，而在这个相互作用为主的模型中，动能项并不重要，从能够进行量子蒙特卡洛大规模计算的角度将其简化为

$$H_0 = -t \sum_{\langle ij \rangle \sigma} (c_{i\sigma}^\dagger c_{j\sigma} + h.c.) ,$$

其中 i, j 代表蜂窝晶格的最近邻跃迁， l, σ 是每个有效自由度的 valley(或者 orbital)和 spin 标记。重要的是相互作用部分怎么写。在文献[3]中，我们考虑的是有效模型在每个原胞中有 4 个电子的情况(对应转角石墨烯中的电中性情

况),那么投影到平带上的相互作用,在实空间蜂窝晶格的有效模型中,可以记为

$$H_{\circ} = U \sum_{\circ} (Q_{\circ} + \alpha T_{\circ} - 4)^2,$$

此处 $Q_{\circ} \equiv \sum_{j \in \circ} (n_j/3)$ 就是每个六边形中的电子数目, $n_j = \sum_{l, \sigma} c_{j,l, \sigma}^{\dagger} c_{j,l, \sigma}$, 而除以3是因为每个格点被3个六边形所共享。另外一个相互作用项是一种集体的动能调制, $T_{\circ} \equiv \sum_{j, \sigma} (i c_{j+1,1\sigma}^{\dagger} c_{j,1\sigma} - i c_{j+1,2\sigma}^{\dagger} c_{j,2\sigma} + h.c.)$, 如图2(a)蓝色箭头所示,表达了(有效的)电子在六边形内部运动的时候,两个valley自由度之间有一个相反的相位。电荷密度项+集体动能项,再平方一下,就给出了系统中超越 on-site Hubbard 的扩展相互作用,虽然它还不是像真正长程的库仑相互作用一般按照幂指数随着距离衰减(当然在实验中有效相互作用也不是真正长程的,而是被样品和门电极之间的距离所控制),不

过毕竟体现出转角石墨烯这样的相互作用模型和传统的强关联晶格模型的不同了。

这里值得一提的是,相互作用的电荷密度项和集体动能项之间的既协作又竞争的关系,而这个关系可以被模型中两项之间的比例 α 来控制。这个 α 本身是一个量级为1的数,它来自转角石墨烯摩尔图案中两个相邻的瓦尼尔态(Wannier state)之间的交叠积分,正是平带“脆弱拓扑性质”的具体实现(如果没有这样的拓扑性质,相邻格点之间的瓦尼尔交叠积分为零)。所以在我们的有效模型中,这个参数与电荷密度和集体动能相互作用的扩展形式,正体现了材料的特点所在,也是我们反复提到的,转角石墨烯有效模型,作为一个强关联模型,和传统的高温超导 Hubbard 模型不同的地方。

好在这样的模型虽然复杂,但是还是可以被量子蒙特卡洛计算严

格处理的。图2(b)就是我们计算所得的上述有效模型在电中性时的基态相图。相图的两个轴分别是相互作用的整体强度 U/W (此处的 W 是我们选择的动能项的带宽)和瓦尼尔态交叠积分的值 α 。可以看到相图的结构相当丰富,这些相都是绝缘相,和实验中看到的关联绝缘体吻合,而每个绝缘相都有其独特的物理特征。QVH是自发产生的拓扑绝缘体,两个valley各自具有相向而行的边界态,得量子自旋霍尔效应 Kane—Mele 模型的风神,不过此处完全是相互作用驱动的,而非能带的拓扑性质所致。cVBS是蜂窝晶格相互作用模型中常见的破缺体系平移对称性的绝缘相,如果是从 Dirac cone 直接进入 VBS,那么还会伴随着有趣的 Gross—Neveu 量子临界行为^[7, 8]。不过这里相图中的主角还是 IVC 态,首先是因为可以看到的 U/W 和 α 继续增大时(甚至比如 U/W 大过了图中所示的量程时),我们的蒙特卡洛计算发现这个相才是真正占据相图大部分相互作用参数空间的基态;同时,在我们的哈密顿量设计中,两个valley之间其实彼此独立,没有电荷的传递,而正是相互作用的效果,使得在每个格点上的两个valley之间电子发生了相干,又因为如此的相干只发生在每个格点上,格点之间仍然没有电荷的传递,系统仍是绝缘体;而这个序又是平移不变的,就有点轨道或者谷自由度铁磁的味道。这样的库仑关联绝缘相,和目前在转角石墨烯电中性处的实验观测最相似(没有明显的拓扑性质,没有明显的平移对称性破缺),也与大量的解析分析和 Hartree—Fock 层次上的实空间、动量空间有效模型的平均场计算吻合。

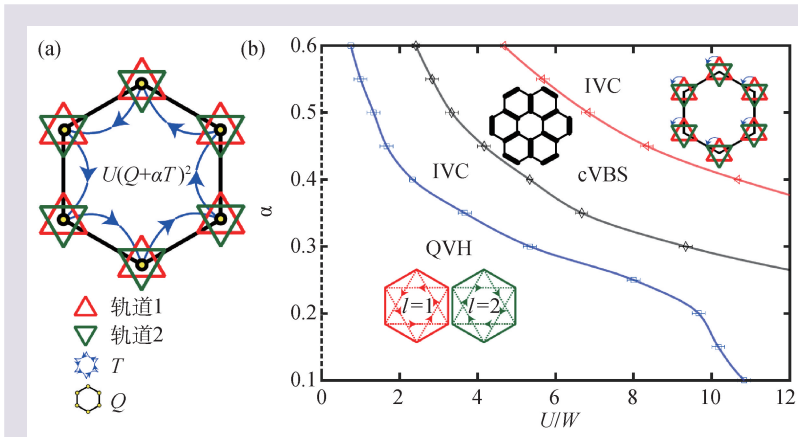


图2 (a)转角石墨烯实空间蜂窝晶格有效模型,每个格点上有电荷、轨道和自旋量子自由度。通过将连续模型中的库仑相互作用投影到平带,可以得到(有效)电子之间的有效相互作用,包括集体动能 T 项和电荷密度 Q 项,相互作用并非局域,而是扩展到整个六边形中;(b)量子蒙特卡洛计算得到的如此模型在电中性时的基态相图。两个轴分别是相互作用的整体强度 U/W 和瓦尼尔态交叠积分的值 α 。QVH 是量子谷霍尔态(quantum valley Hall state),IVC 是谷间相干态(intervalley coherent state),cVBS 是柱状共振价键态(columnar valence bond solid)的缩写。这些相都是绝缘相,和实验中看到的关联绝缘体吻合^[3]

这张相图，总结了我们对电中性时，转角石墨烯实空间有效模型的理解。

说完了电中性的情况，再来看看其他电子填充数时的模型计算。从实验上看，转角石墨烯在整数电子填充的情况下，目前实验都看到绝缘态。特别是对于奇数填充的情况(上面所说的电中性情况，可以计填充数为4，是偶数的情况)，尤其是填充数为1(或者3/4，取决于记法)的情况，实验看到了陈绝缘体的量子反常霍尔效应的迹象^[9, 10]。那么下面的问题就是，如此的陈绝缘态能否仍在我们这样的有效模型中实现。

在模型的构造上，我们可以将上面所讨论的电中性模型中的valley和spin自由度冻结，使得系统只剩下一个valley和一个spin上的电荷自由度，这就和观察到量子反常霍尔效应的实验安排类似，然后讨论此时系统在Kang—Vafeek相互作用 $H=U_0 \sum_{\circ} (Q_{\circ} + \alpha T_{\circ} - 1)^2$ 下的基态。此时稍微需要注意的是，因为自由度的冻结，在每个原胞中的电子数从电中性时的4个(就是前面哈密顿量括弧中的那个4)，降到了1个(就是此处哈密顿量括弧中的那个1)。这样的问题，量子蒙特卡洛不能解(有符号问题)，但是对于蒙蒙卡的好朋友张量量(仍是北京航空航天大学陈斌斌博士、李伟老师等几位专家)却因为系统基态都是绝缘态，量子纠缠熵特别小，刚好可以进行如“今天天气，哈哈……”这样轻车熟路的计算了。

图3就是当电子的valley和spin自由度冻结后，蜂窝晶格上的有效模型，通过密度矩阵重整化群(DMRG)算出来的基态相图^[4]。这里

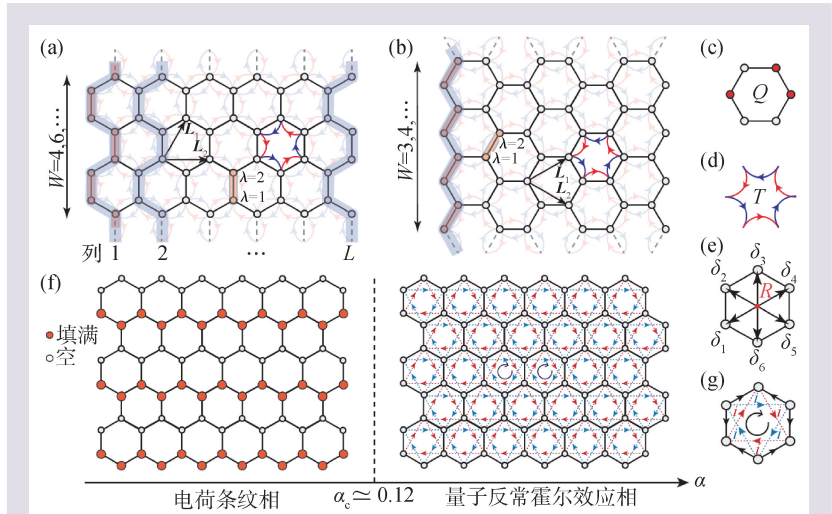


图3 DMRG计算转角石墨烯实空间蜂窝晶格有效模型，此处valley和spin自由度冻结，只剩电荷自由度。(a—e)为模型和DMRG计算的细节，(f)为基态相图，分为电荷条纹相(Stripc)和量子反常霍尔效应相(QAH)，此处的QAH就是拓扑莫特绝缘体，(g)描绘了相互作用驱动的自发产生的此紧邻虚跃迁，一如Haldane模型^[4]

我们彻底抛弃了 H_0 动能项，只考虑相互作用项中电荷密度 Q 和集体跃迁 T 的相互竞争，通过 α 来调控。计算发现，在这个一维的相图中存在两个相，一是破缺系统平移对称性的条纹相(stripe state)，就是电子间隔着占据着蜂窝晶格中的一条条格点；另一个就是很多实验中看到的一致的量子反常霍尔效应相(QAH, quantum anomalous Hall state)。此处十分有趣的是，这个QAH和能带毫无关系，因为我们的模型干脆没有能带，而就是在 $\alpha > 0.12$ 之后，蜂窝晶格每个六边形里，自发地冒出来了如图3(f)或者(g)中由蓝色和红色箭头所示的次近邻跃迁，而且它们的幅度前都有一个虚数，就是 $\pm i$ 。

稍微熟悉一点拓扑绝缘体文献的读者，应该都知道著名的Haldane模型(注意，不要和Haldane猜想^[11]混淆)正是这个样子。Haldane通过手放的蜂窝晶格次近邻虚数跃迁，给出了量子反常霍尔效应的第一个晶格模型，但是那是人造的，不是

自发的。而我们这里的QAH中虚数的跃迁不是人造(手放)的，而恰恰是电荷密度 Q 和集体跃迁 T 相互竞争的结果。这就又让人想起了拓扑物理学中的另一位巨擘，已故的张首晟师，首晟师是开风气的一代宗师，传世的发现不用在此列举。但在其中有一条是关于拓扑莫特绝缘体(topological Mott insulator)这个概念的^[12]，大意是说能否实现与能带没有关系，完全是相互作用驱动的拓扑绝缘体。这样的概念，在当时引起了研究关联与拓扑的凝聚态学界的广泛兴趣，但是在他们的原始文献^[12]中，所提出的能够实现拓扑莫特绝缘体的强关联模型，经过解析和数值方面好几年的深入研究，却发现并非如人所愿，而是给出了一些拓扑平庸的物态。这股研究拓扑莫特绝缘体的热潮，也就随着时间的流逝慢慢冷落了下来。

谁承想，我们在此处找到的QAH就是首晟师他们当年所提出的拓扑莫特绝缘体。由此上溯近几十年的凝聚态物理学的发展，Haldane

告诉我们其实并不需要外磁场就能使电子生活在拓扑非平庸的能带上,从而实现量子化的霍尔电导——是为量子反常霍尔效应,但是仍然需要手放具有特殊性质的能带(或者跃迁)。首晟师他们提出拓扑莫特绝缘体的本意,就是在问能否连这样特殊性质的能带(或者跃迁)也省略,单靠着强关联的量子多体相互作用,直接给出如量子反常霍尔效应这样的陈绝缘态(此处自发破缺时间反演对称性),这个概念简洁深刻,但是经过了人们好些年的努力,发现当时提出的相互作用模型,并没有这样的基态。十几年过去了,直到转角石墨烯的出现,人们为了解释这阿拉丁神灯召唤而来的材料,写出了种种模型,发展了种种计算方法求解如是的模型,才让我们在研究的过程中,误打误撞般地,在这一个模型中找到了拓扑莫特绝缘体存在的第一个实例。对

于亲身经历最近这十多年凝聚态物理学,拓扑和关联效应方面的从业人员,对于了解最近这些年里行业中进展和人事沉浮的人们,我想,面对这里的结果,多少都会掩卷长叹,低回不已的。

5 未得的三昧

哎,本来是想简介转角石墨烯近几年的迅猛发展,并从理论模型与其量子多体数值求解的角度,讲讲如是问题的困难和其中孕育的新的物理发现。这确实是一个新的领域,如何写出合适的有效模型?如何严格处理众多复杂度下的长程库仑相互作用?这些新的问题给量子多体计算方法带来新的机遇和挑战,更别说从实验的角度如何将传统的凝聚态物理学动力学和热力学诸多成熟的观测方法运用到这样的系统中?真是从理论到数值再到实

验,都大有可为,……。

但是本来是轻快打趣甚至有些戏谑的调子,却还是不免被这神灯召唤出的材料,招引得想起了亲眼所见、亲身经历的人世坎坷,难免沉重了起来,心情有些难过。还清楚地记得,十几年前在维尔兹堡第一次见到首晟师的情景,真是惊为天。现在头脑中却浮现出黄永玉为钱钟书写的话:“再高级、再高级的人物……,不过,我以为这位人物真不平常,读那么多书都记得住,作了大发挥,认认真真地不虚度时光地劳作,像这样的人剩下的不多了。”确实是这样的呀。还是就此停笔吧。

看来大先生说的对,凡事一说,即落言筌,不再能得三昧。说“转角石墨烯的三昧”者,即非得“转角石墨烯的三昧”。三昧真谛,在行不在言,我们还是埋头苦干吧。一切善知识,心知其意可也!

参考文献

- [1] 戴希. Chinese Physics B “Twistronics” 专题编者按. <https://mp.weixin.qq.com/s/3A1c9Zdyf9boO9HVWdV9Vw>
- [2] Vahedi J, Peters R, Missaoui A *et al.* Magnetism of magic-angle twisted bilayer graphene. 2021, arXiv: 2104.10694
- [3] Liao Y D, Kang J, Breiø C N *et al.* Correlation-induced insulating topological phases at charge neutrality in twisted bilayer graphene. *Phys. Rev. X*, 2021, 11: 011014
- [4] Chen B B, Liao Y D, Chen Z Y *et al.* Realization of topological Mott insulator in a twisted bilayer graphene lattice model. 2020, arXiv: 2011.07602
- [5] de Laissardière G T, Mayou D, Magaud L. Localization of Dirac electrons in rotated graphene bilayers. *Nano Lett.*, 2010, 10: 804
- [6] Bistritzer R, MacDonald A H. Moiré bands in twisted double-layer graphene. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 2011, 108(30): 12233
- [7] Lang T C, Meng Z Y, Muramatsu A *et al.* Dimerized solids and resonating plaquette order in SU(N)-Dirac Fermions. *Phys. Rev. Lett.*, 2013, 111: 066401
- [8] Liao Y D, Meng Z Y, Xu X Y. Valence bond orders at charge neutrality in a possible two-orbital extended Hubbard model for twisted bilayer graphene. *Phys. Rev. Lett.*, 2019, 123: 157601
- [9] Sharpe L, Fox E J, Barnard A W *et al.* Emergent ferromagnetism near three-quarters filling in twisted bilayer graphene. *Science*, 365: 605
- [10] Serlin M, Tschirhart C L, Polshyn H *et al.* Intrinsic quantized anomalous Hall effect in a moiré heterostructure. *Science*, 2020, 367: 900
- [11] Haldane 大叔的猜想. <https://mp.weixin.qq.com/s/0fW65mMxFS9tHojfqb0eQ>
- [12] Raghu S, Qi X L, Honerkamp C *et al.* Topological Mott insulators. *Phys. Rev. Lett.*, 2008, 100: 156401