arXiv:2611.32466v1 [cond-mat.mes-hall] 24 Nov 2026

非对称堆叠石墨烯莫尔超晶格中的可重构手性声子及其选择

Yi-Fei Zhang[1,2,‡], *Ting-TingWang*[3,‡], *Zhong-JieWang*[1,2], *Miao-LingLin*[1,2], *Yue Wang*[1,2], *Zi-JianZhong*[1,2], *Xue-Lu Liu*[1,2], *Heng Wu*[1,2], *Lin-Shang Chen*[1,2], *Yan-Meng Shi*[1,2], *Jin-Yang Lou*[1,2], *Lin-Han Li*[1,2] *Jia-Liang Xie*[1,2], *Rui Mei*[1,2], *Ti-Ying Zhu*[1,2], *Li-Fa Zhang*[3,*] *Jiang-Bin Wu*[1,2,†] 和 *Ping-Heng Tan*[1,2‡]

[1] *State Key Laboratory of Semiconductor Physics and Chip Technologies,Institute of Semiconductors, Chinese Academy of Sciences, Beijing, 100083, China*[2] *Center of Materials Science and Optoelectronics Engineering, University of Chinese Academy of Sciences, Beijing, 100049, China*

[3] *Phonon Engineering Research Center of Jiangsu Province,Ministry of Education Key Laboratory of NSLSCS, Center for Quantum Transport and Thermal Energy Science, Institute of Physics Frontiers and Interdisciplinary Sciences,School of Physics and Technology, Nanjing Normal University, Nanjing, 210023, China and*

‡ *Contributed equally to this work*

摘要

手性声子是携带角动量的晶格振动，为调控凝聚态物质中的声子介导现象提供了新的手段，但按需生成和确定性调控仍面临挑战。在此，我们利用螺旋度分辨拉曼光谱表明，非对称堆叠的石墨烯莫尔′超晶格为手性声子提供了一个可重构平台。我们观测到，层间手性剪切声子和层内光学声子均具有非零圆偏振度。手性声子拉曼张量模型将这一响应归因于界面 C_2对称性破缺，以及范霍夫奇点区域内的拉曼共振。通过堆叠几何构型之间的空间变换，反转扭转方向或堆叠顺序均会使圆偏振度反转。通过调节激发能和扭转角，我们实现了对层间剪切声子圆偏振度近乎全范围的调控，其范围从 -1到 1；同时，栅极诱导的层间势重新分布能够实现显著且可逆的原位调制。这些结果确立了非对称堆叠的石墨烯莫尔′超晶格作为生成和调控手性声子的多功能平台，并对光电子学和量子技术具有重要意义。

关键词：手性声子、非对称堆叠石墨烯莫尔′超晶格、螺旋度分辨拉曼光谱、范霍夫奇点、可重构声子学

I. 引言

手性声子源于圆形或椭圆形的晶格运动，同时具有实空间角动量和量子化的赝角动量（声子角动量）[1–5]。近年来，人们在多种晶格几何结构中预测了手性声子的存在，例如 kagome[6], Kekul´e[7], 四方[8], 和莫尔′晶格[9], ，并通过多种方法观测到手性声子，包括瞬态红外光谱[3], 拉曼光谱[10, 11], 共振非弹性X射线散射[12], 和超快电子衍射[13]。它们还可以与其他粒子或准粒子耦合，例如电子[13],激子[14] 和磁振子[15–17]。

由于声子支配晶体固体中的电荷、热和光输运[18], ，人们提出手性声子凭借其独特的手性自由度，在许多新颖效应中发挥关键作用，例如高温超导[19], 、定向热管理[20], 和单光子纠缠[21]。实现这些设想需要按需产生并可逆地调控手性声子。在块体材料中，这一点受到不可变晶格几何结构的阻碍，因为后者直接决定了手性声子的性质[19, 20]。然而，范德华异质结构能够克服这一限制，因为其无悬挂键界面消除了晶格失配限制，并能精确调控晶格堆垛几何，从而使手性声子性质得以调谐

* phyzlf@njnu.edu.cn
† jbwu@semi.ac.cn
‡ phtan@semi.ac.cn

性质。在石墨烯莫尔′超晶格（石墨烯莫尔超晶格）中，已有研究表明，这类高度可调的结构可呈现范霍夫奇点[22–24]，关联绝缘体[25, 26]，量子反常霍尔态[27, 28]，和非常规超导[26, 29, 30]。通过调控两层石墨烯片层之间的扭转方向、扭转角和堆叠顺序，可以构筑具有可编程晶格手性的石墨烯莫尔超晶格；其中，双重简并面内模式的圆形叠加可形成旋转方向相反的声子态，并与圆偏振光选择性耦合[21, 31]。这种结构可调性为定制手性声子性质提供了直接手段，而这方面目前仍鲜有探索。

在此，我们通过螺旋度分辨拉曼光谱（HRRS）证明，非对称堆叠的GMS可构成一个用于手性声子的可重构平台。在莫尔布里渊区的 Γ 点，非对称堆叠在手性层间剪切（C）声子和层内光学（G）声子中均表现出显著的手性依赖拉曼响应，而对称堆垛则没有这种响应。手性声子拉曼张量分析表明，这种差异源于扭转诱导的 C_2对称性破缺以及范霍夫奇点区域内的拉曼共振。结合第一性原理计算，该框架进一步解释了为何C 声子的圆偏振度（DoCP）远大于G 声子的圆偏振度。揭示堆叠几何构型之间关系的空间变换表明，通过调节界面扭转手性和堆叠顺序，可以可逆地控制DoCP。通过调节激发能（E_{ex}）和界面扭转角（θ），我们实现了对C 声子DoCP符号和大小的可逆控制，使其几乎可在 -1 至1的整个范围内调节。此外，通过电场控制层间势能重新分布，也可以显著调制DoCP。这些发现确立了扭转与堆垛工程作为一种在范德华异质结构中产生和控制手性声子的多用途途径，并为其在光电子学、超导和量子技术中的应用铺平了道路。

II. 结果与讨论

GMS 中的晶格动力学与声子手性

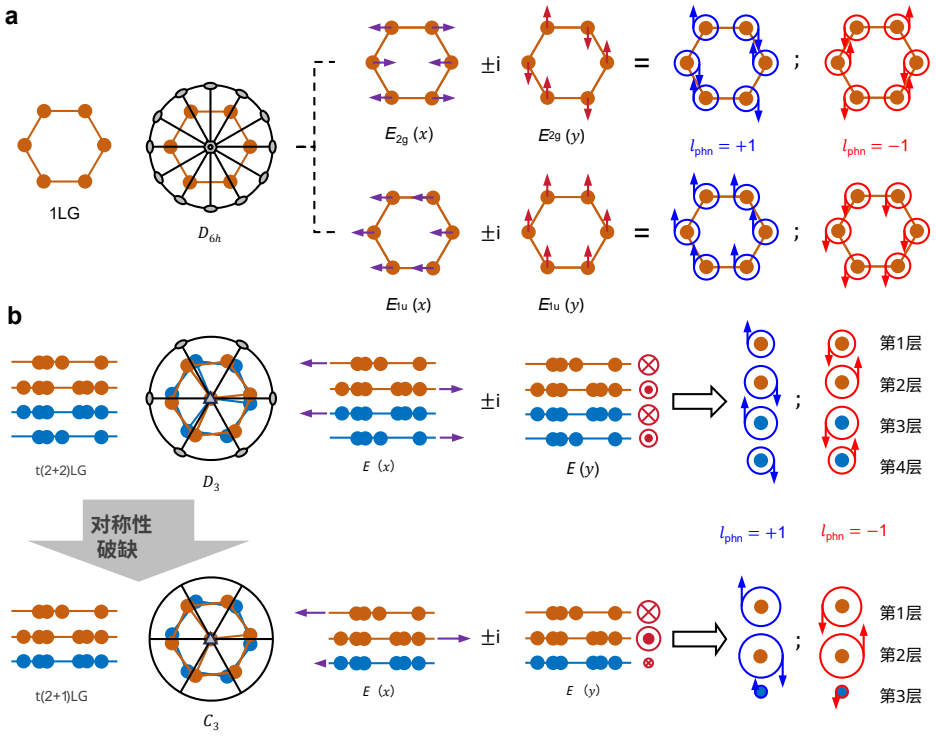

图 1. 基面位于 x-y 平面的单层石墨烯和石墨烯莫尔超晶格的晶格结构与动力学示意图。(a) 单层石墨烯的晶格结构、立体投影、E_{1u} 和 E_{2g} 模式的线性原子位移，以及由此形成手性声子的原子圆周运动。(b) t(2+1)LG 和 t(2+2)LG 中手性 C 声子的晶格结构、立体投影、 E 模式的线性层间位移，以及相应的圆周层运动（以各层内的圆周原子轨迹表示）。箭头长度表示位移或运动振幅，并标示了手性声子的声子角动量。

单层石墨烯（1LG）具有平面六角晶格，其 D_{6h} 点群对称性[32, 33]（图1a左图）；在布里渊区的 Γ 点，二重简并的面内声学声子对应于 E_{1u} 不可约表示，而G声子对应于 E_{2g}[34]。在角动量守恒所支配的光子-声子相互作用中，简并的正交线性振动叠加形成与对称性相适配的圆偏振手性声子模式，并携带非零角动量（图1a右图）[2, 21, 35, 36]。

GMSs 是由两个组分以特定角度扭转形成的异质结构，这两个组分可以是单层或 AB 堆垛多层石墨烯（图 1b 左图）。从结构上看，GMSs 可分为具有 D_3 点群对称性的对称堆垛（例如 t(n+n)LG，由两个 n 层块组成），以及呈现 C_3 对称性的非对称堆叠（例如 t(m+n)LG，其具有 $m \neq n$[37]）。GMSs 中的晶格振动继承并拓展了单层石墨烯中的振动：在莫尔布里渊区的 Γ 点，GMSs 除了保留 G 声子和声学声子外，还支持具有有限能量的 C 声子；这类声子源自单层石墨烯的声学声子，其特征是刚性层面内相对位移[24]。具体而言，nLG 有 n-1 个二重简并的 C 声子，记作 $C_{n,\ n-j}$(j = 1、2、……、n − 1)，其中 $C_{n,\ 1}$ 声子的频率最高。GMSs 中的 C 声子和 G声子在光子-声子相互作用下也呈现手性特征（图 1b 右图）。由于 t(m+n)LG 的扭转界面处不存在 C_2 对称性（不同于 t(n+n)LG），C 声子的振动振幅在mLG 与 nLG 组分之间不再相关。如图 1b 所示，通过线性链模型[24]，计算得到的 t(2+1)LG 和 t(2+2)LG 中 $C_{2,1}$ 声子的层间位移表明，$C_{2,1}$ 声子局域于双层石墨烯组分内。t(2+1)LG 中线性运动及其形成的圆周运动的位移振幅，明显偏离了 t(2+2)LG 中观察到的镜面对称情形，这与对称性破缺效应相符。

GMS中的手性依赖的拉曼响应

在石墨烯莫尔超晶格中，Γ点手性声子具有局限于基面内的内禀角动量；在我们的实验室笛卡尔坐标系中，基面记为 x-y 平面。由于三重旋转对称性，这些手性声子的量子化PAM（l_{phn}）为 ±1，其正负取决于从原点沿 z轴朝向 $+z$ 观察时的旋转方向（ +1为顺时针， −1为逆时针；详情见补充材料注释1）。高分辨率共振拉曼光谱中的光子携带 ±1的自旋角动量（l_{pht}）；按照相同的观察约定 [11]，电场矢量在同一 x-y 平面内顺时针（+1）或逆时针（−1）旋转。因此，拉曼散射过程中的PAM守恒产生了支配光子与 Γ点手性声子的选择定则：
$l_{\mathrm{pht(s)}} - l_{\mathrm{pht(i)}} = -l_{\mathrm{phn}} + 3N$，其中 $l_{\mathrm{pht(i)}}$ 和 $l_{\mathrm{pht(s)}}$ 分别表示入射光子和散射光子的 l_{pht}，而 N 是源于晶格三重旋转对称性的整数 [2, 11, 31, 35]。因此，采用 $l_{\mathrm{pht(i)}} = -1$ 和 $l_{\mathrm{pht(s)}} = +1$ 的高分辨率共振拉曼光谱可选择性地探测具有 $l_{\mathrm{phn}} = +1$的手性声子，而$l_{\mathrm{pht(i)}} = +1$ 和 $l_{\mathrm{pht(s)}} = -1$ 则选择 $l_{\mathrm{phn}} = -1$ （图2a）。

在HRRS实验中（详情见图2b和方法），对于具有 $l_{\mathrm{pht}} = \pm 1$ 的光子，入射光和散射光的圆偏振态分别记为 σ^+ 和 σ^-。这一命名方式有意区别于传统的左旋/右旋分类，后者与光传播方向相关（详情见方法）。四种HRRS偏振构型（$\sigma^+\sigma^+$、 $\sigma^-\sigma^-$、 $\sigma^+\sigma^-$和 $\sigma^-\sigma^+$）按顺序列出入射光子和散射光子的螺旋度来定义。如补充图 S1所示，单层石墨烯中的G声子仅在 $\sigma^+\sigma^-$ 和 $\sigma^-\sigma^+$ 构型下呈现拉曼信号。这一观察结果与PAM守恒及先前的报道[38]，完全一致，证实了我们的实验装置可用于探测声子手性。

图2c展示了t(2+2)LG和t(2+1)LG（$\theta = 12.5°$）的HRRS光谱。根据第一性原理计算得到的声子色散（补充图S2）及先前研究[24]，两个样品中位于 ∼ 31cm^{-1} 和 ∼ 1580 cm^{-1} 的显著峰分别对应$C_{2,1}$ 和G声子。这些声子在交叉圆偏振（$\sigma^+\sigma^-$ 和 $\sigma^-\sigma^+$）构型下被观测到，与其手性声子的属性一致。值得注意的是，在t(2+2)LG中， $\sigma^+\sigma^-$ 构型（$I_{\sigma^+\sigma^-}$）下的拉曼强度等于 $\sigma^-\sigma^+$ 构型（$I_{\sigma^-\sigma^+}$）下的强度；而在t(2+1)LG中，这两种构型下的C声子和G声子强度均不相同。这种强度不对称是手性依赖的拉曼响应的明显特征，可用圆偏振度定量表示：

$$\mathrm{DoCP} = \frac{I_{\sigma^+\sigma^-} - I_{\sigma^-\sigma^+}}{I_{\sigma^+\sigma^-} + I_{\sigma^-\sigma^+}}. \tag{1}$$

在 $E_{\mathrm{ex}} = 2.33$ eV 下，$C_{2,1}$ 声子表现出较大的圆偏振度（DoCP），为 0.70，而 G声子的该数值则小得多，为 −0.17 （图2d）。

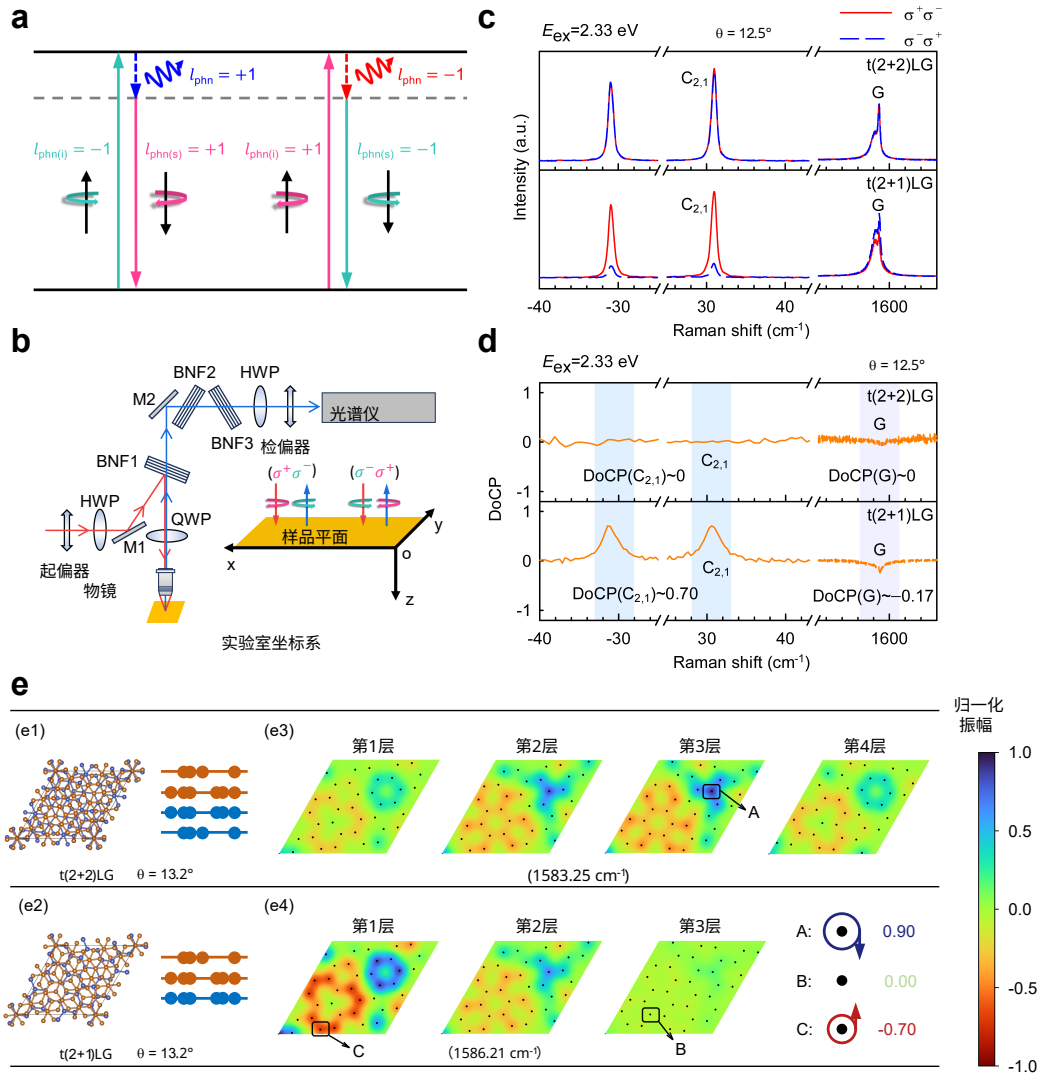

图2. 石墨烯莫尔超晶格中手性声子的高分辨率共振拉曼光谱（HRRS）。（a）拉曼过程中的赝角动量守恒定则示意图。（b）实验室坐标系中HRRS实验装置和圆偏振配置示意图。缩写：M，反射镜；HWP，半波片；QWP，四分之一波片；BNF，BragGrate陷波滤光片。（c）在激发能为2.33 eV时，$\sigma^+\sigma^-$ 和 $\sigma^-\sigma^+$ 配置下t(2+2)LG和t(2+1)LG中手性C声子和G声子的HRRS。（d）t(2+2)LG和t(2+1)LG中手性C声子和G声子的DoCP 光谱，并标出了相应的圆偏振度值。（e）第一性原理分层振幅图，显示了（e3）t(2+2)LG（$\theta = 13.2°$）和（e4）t(2+1)LG（$\theta = 13.2°$）中G声子的原子圆周运动。t(2+2)LG和t(2+1)LG的晶格结构（俯视图和侧视图）分别展示于（e1）和（e2）中。颜色的正负表示原子圆周运动的手性，而颜色强度量化其相对振幅。所有颜色强度均已归一化为在t(2+1)LG-CW中观测到的所有G声子中的最大圆周运动振幅（详见补充材料第I.3节）。代表性点A、B和C与相应的原子圆周运动及其定量值一并标出。

手性声子拉曼张量模型

为理解手性依赖的拉曼响应的起源，我们推导了手性声子的拉曼张量与其正交线偏振对应态的拉曼张量之间的关系。如图 1 中的原子运动所示，具有 $l_{\mathrm{phn}} = \pm 1$ 的声子的正则坐标（$Q_\pm$）可写为 $Q_\pm = （Q_1 \pm \mathrm{i}Q_2）/\sqrt{2}$，其中$Q_1$ 和 Q_2 是相应正交线性振动模式的正则坐标。振动模式 ν 的拉曼张量 R_ν 定义为极化率 χ 相对于其正则坐标 $\partial\chi/\partial Q_\nu$ 的导数，并在 $Q = 0$[39]处求值。因此，如果 R_1 和 R_2 是两个正交线性模式的拉曼张量，则具有 $l_{\mathrm{phn}} = \pm 1$ 的手性声子的拉曼张量可表示为 $\mathrm{R}_\pm = （\mathrm{R}_1 \mp \mathrm{i}\mathrm{R}_2）/\sqrt{2}$ （详细信息请参阅补充材料注 2）。手性声子在圆偏振配置下的拉曼强度

因此， $I_{\pm} \propto |\mathbf{e}_s^{\dagger} \cdot \mathbf{R}_{\pm} \cdot \mathbf{e}_i|^2$，其中 $\mathbf{e}_i$ ($\mathbf{e}_s$) 表示入射（散射）光的琼斯矢量，其圆偏振态为 σ^+或 σ^-，具体写作 $\frac{1}{\sqrt{2}}(1, \mathrm{i}, 0)^{\mathrm{T}}$或 $\frac{1}{\sqrt{2}}(1, -\mathrm{i}, 0)^{\mathrm{T}}$，相应地，且 $\mathbf{e}_s^{\dagger}$是 $\mathbf{e}_s$的厄米共轭。该手性声子拉曼张量模型在保持PAM守恒的同时，再现了实验观测到的拉曼强度。在 $\sigma^+\sigma^-$ 和 $\sigma^-\sigma^+$ 构型下，具有 $l_{\mathrm{phn}} = \mp 1$ 的单层石墨烯中的 G声子可被选择性激发，其正交线偏振对应态属于 E_{2g} 不可约表示。拉曼张量 R_(E_{2g}) 和 R+(E_{2g}) 分别仅在 $\sigma^+\sigma^-$ 和 $\sigma^-\sigma^+$ 构型下具有拉曼活性，并产生相等的拉曼强度。这导致强度比 $I_{\sigma^+\sigma^-} : I_{\sigma^-\sigma^+} : I_{\sigma^+\sigma^+} : I_{\sigma^-\sigma^-} = 1:1:0:0$（详见补充说明 3）。这些结果再现了补充图 S1所示的实验 HRRS 行为，并验证了所提出的手性声子理论框架。

所有C和G声子在两种t(n+n)LG和t(m+n)LG中都属于 E 不可约表示。然而， C_2扭转界面处的对称性破缺使点群对称性从 D_3 （对称t(n+n)LG中）降低到 C_3（非对称t(m+n)LG），从而在 E 声子于t(m+n)LG中的拉曼张量里引入了相对于t(n+n)LG中相应声子的额外非零元，如下详述[39]:

$$\mathbf{R}_{1,2}(E) \text{ for } D_3 : \begin{bmatrix} c & 0 & 0 \\ 0 & -c & d \\ 0 & d & 0 \end{bmatrix}, \begin{bmatrix} 0 & -c & -d \\ -c & 0 & 0 \\ -d & 0 & 0 \end{bmatrix}, \mathbf{R}_{1,2}(E) \text{ for } C_3 : \begin{bmatrix} c & e & f \\ e & -c & d \\ f & d & 0 \end{bmatrix}, \begin{bmatrix} e & -c & -d \\ -c & -e & f \\ -d & f & 0 \end{bmatrix}. \tag{2}$$

其中所有元素（c、 d、 e和 f）在共振激发 [40–42]下均可为复数。可以推导出，对于t(2+2)LG，$I_{\sigma^+\sigma^-}[\mathbf{R}_-(E)] = I_{\sigma^-\sigma^+}[\mathbf{R}+(E)] \propto 2|c|^2$ 且圆偏振度 $= 0$。相比之下，对于t(2+1)LG，拉曼强度对 $\sigma^+\sigma^-$ 和 $\sigma^-\sigma^+$ 配置给出不同的表达式，即 $I_{\sigma^+\sigma^-}[\mathbf{R}_-(E)] \propto 2|c + e\mathrm{i}|^2$ 和 $I_{\sigma^-\sigma^+}[\mathbf{R}+(E)] \propto 2|c - e\mathrm{i}|^2$，且C和G声子相应的圆偏振度取如下形式:

$$\mathrm{DoCP} = \frac{2|c + e\mathrm{i}|^2 - 2|c - e\mathrm{i}|^2}{2|c + e\mathrm{i}|^2 + 2|c - e\mathrm{i}|^2} = \frac{2\,\mathrm{Im}(c\,e^*)}{|c|^2 + |e|^2}. \tag{3}$$

显然，要在石墨烯莫尔超晶格中观测到非零圆偏振度，就必须有非零的 c 和 e，且二者之间存在相对相位差。与 t(2+2)LG 不同，非对称堆叠石墨烯莫尔超晶格中的界面 C_2 对称性破缺会引入非零的 e。先前关于 $\theta = 12.5°$ 处石墨烯莫尔超晶格的研究表明，t(2+1)LG 中的 $C_{2,1}$ 声子会在 $E_{\mathrm{ex}} = 2.33$ eV 处的范霍夫奇点范围内发生共振激发， [43], 使拉曼张量元 c 和 e取复数值。因此，与 t(2+2)LG 中观测到的零圆偏振度不同，t(2+1)LG 中的 $C_{2,1}$ 声子表现出非零圆偏振度，如图 2c 和图 2d 所示。

为阐明为何 G声子的圆偏振度远小于 $C_{2,1}$ 声子在 t(2+1)LG 中的圆偏振度，我们使用第一性原理计算，得到了 t(2+2)LG 和 t(2+1)LG 中 G声子的两种正交线性振动模式（图 2(e1) 和图 2(e2)），随后构建了它们的手性叠加态（详见补充材料第 I.3 节）。图 2(e3) 和图 2(e4) 分别展示了与 t(2+2)LG 和 t(2+1)LG 中 G声子相关的原子圆周运动的归一化振幅。对比结果表明，破坏 C_2 对称性会从根本上重新分配不同层间的声子振幅，但几乎不改变层内运动模式。通过比较莫尔′超晶格内的振动振幅分布（见补充图 S3 和图 S4），可见 t(2+1)LG 中的手性 G声子在平面内保留了与 t(2+2)LG 中几乎相同的原子振动。由于 G声子主要由层内运动主导，而 C 声子则受到层间耦合的强烈影响 [24, 34], ， C_2 对称性破缺仅会使 t(2+1)LG 中 G声子的拉曼张量发生很小的变化，因此 $|e| \ll |c|$。根据公式 3，这解释了为何观测到的 G声子圆偏振度远小于 t(2+1)LG 中 $C_{2,1}$ 声子的圆偏振度。

堆垛几何对圆偏振度符号的影响

对于固定的扭转角和层数，基面位于 x-y 平面的非对称堆叠石墨烯莫尔超晶格存在四种不等价的堆叠几何构型，它们通过绕 y 轴的二重旋转 C_2 （在图3a中记为 $C_2(y)$）、关于 x-z 平面的镜面操作 σ_v （在图3a中记为 $\sigma_v(x\text{-}z)$）及其组合相互关联。如图3a所示，以 $m = 2$、 $n = 1$ 和 $\theta = 12.5°$ 的情形为例，t(2+1)LG-顺时针，即底部单层石墨烯相对于顶部双层石墨烯顺时针扭转的 t(2+1)LG，可通过 $\sigma_v(x\text{-}z)$ 转变为其逆时针对映体 t(2+1)LG-逆时针。对 t(2+1)LG-顺时针施加 $C_2(y)$，会交换双层石墨烯和单层石墨烯组分，并生成 t(1+2)LG-顺时针。对 t(2+1)LG-顺时针施加组合操作 $\sigma_v(x\text{-}z)C_2(y)$ 或 $C_2(y)\sigma_v(x\text{-}z)$，会得到 t(1+2)LG-逆时针。图3a展示了 $\sigma_v(x\text{-}z)$ 和 $C_2(y)$ 操作的变换矩阵。

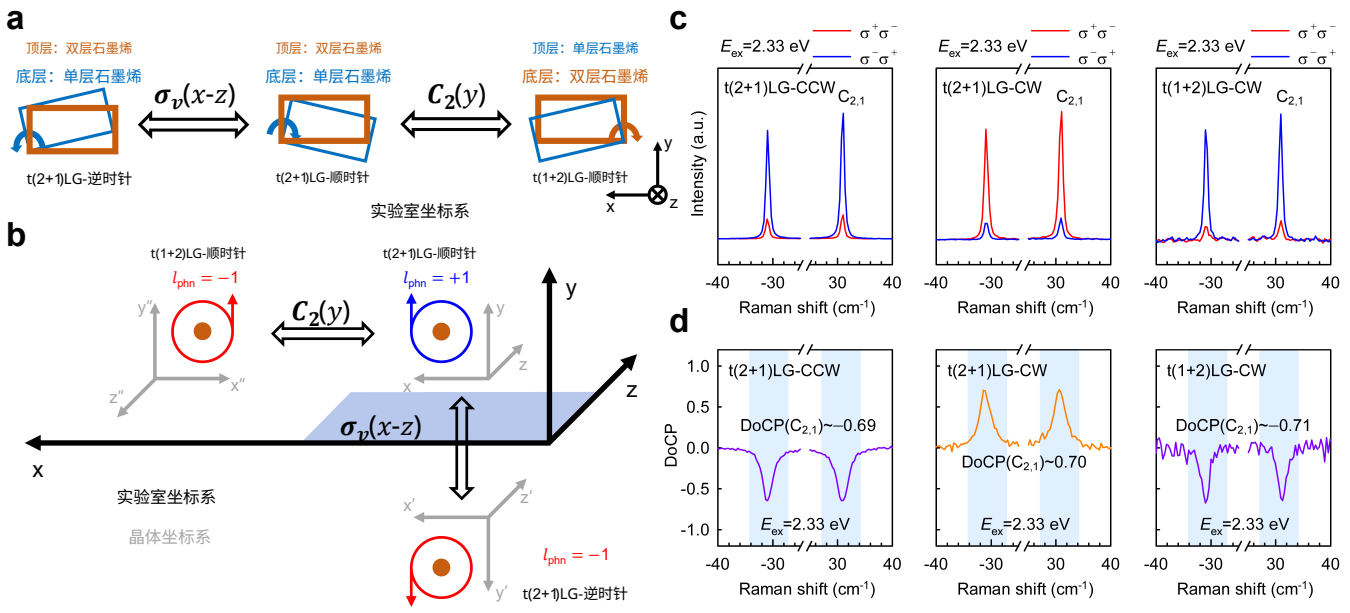

图3. 非对称堆叠的GMS中圆偏振度与堆叠几何构型之间的关系。(a) 具有相同扭转角的 t(2+1)LG-逆时针、t(2+1)LG-顺时针 和 t(1+2)LG-顺时针 之间堆叠构型及空间变换关系的示意图。 $\sigma_v(x\text{-}z)$分别表示镜像反演，其中 x-z 平面作为反射面； $C_2(y)$表示绕 y 轴的二重旋转。(b) 坐标系与声子手性之间关系的示意图。实验室坐标系（x, y, z）以黑色表示，而与实验室坐标系对齐的 t(2+1)LG-顺时针 的晶体坐标系（x, y, z）以灰色表示。另外两个灰色坐标系（x', y', z'）和（x'', y'', z''）分别是空间变换 σ_v (x-z) 和 $C_2(y)$ 下 t(2+1)LG- 顺时针 的晶体坐标系。图中标出了实验室坐标系下手性声子的声子角动量。(c) 在 $\sigma^+\sigma^-$ 和 $\sigma^-\sigma^+$ 构型下，$E_{\mathrm{ex}} = 2.33$ eV处 t(2+1)LG-逆时针、t(2+1)LG-顺时针 和 t(1+2)LG-顺时针 中 $C_{2,1}$ 声子的高分辨率共振拉曼光谱（均具有 $\theta = 12.5°$）。(d) 不同堆叠几何构型下 $C_{2,1}$ 声子的 DoCP 光谱，并标注了相应的圆偏振度值。

$$\mathbf{M}_{\sigma_v(x\text{-}z)} = \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & -1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix}, \mathbf{M}_{C_2(y)} = \begin{bmatrix} -1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & -1 \end{bmatrix}. \tag{4}$$

我们对图3a所示的三种代表性构型的样品进行了高分辨率共振拉曼光谱测量。如图3c、d所示，在相同的 $12.5°$ 扭转角下，t(2+1)LG-逆时针和 t(2+1)LG-顺时针中的 $C_{2,1}$ 声子具有几乎相同的圆偏振度大小，但符号相反。t(2+1)LG-顺时针和 t(1+2)LG-顺时针之间也观察到类似的符号反转。这一行为可由 $\sigma_v(x\text{-}z)$ 和 $C_2(y)$ 操作对声子手性和拉曼张量的作用来理解。如图3b所示，在 $\sigma_v(x\text{-}z)$ 作用下，声子角动量在变换后的坐标系中反号；例如，t(2+1)LG-顺时针中的 $l_{\mathrm{phn}} = +1$ 会变为 t(2+1)LG-逆时针中的 $l_{\mathrm{phn}} = -1$ 。相应地，顺时针和逆时针堆叠结构中具有 $l_{\mathrm{phn}} = \pm 1$ 的声子的拉曼张量满足关系 $\mathrm{R}^{\mathrm{CCW}(\mp)} = \mathrm{M}_{\sigma_v}(x\text{-}z)\, \mathrm{R}^{\mathrm{CW}(\pm)}\, \mathrm{M}^{\mathrm{T}}_{\sigma_v}(x\text{-}z)$。这一关系直接导致拉曼强度比 $I^{\mathrm{CW}}_{\sigma^+\sigma^-}$: $I^{\mathrm{CW}}_{\sigma^-\sigma^+} = I^{\mathrm{CCW}}_{\sigma^-\sigma^+} : I^{\mathrm{CCW}}_{\sigma^+\sigma^-}$，因而在整个石墨烯莫尔超晶格家族中，顺时针与逆时针堆叠结构的圆偏振度符号相反。t(n+1)LG-顺时针和 t(n+1)LG-逆时针中观察到的圆偏振度反转（$n = 3$ 和 4；补充图S5）进一步证实了这一关系。同样， $C_2(y)$ 操作会将 t(m+n)LG 转变为 t(n+m)LG，同时保留顺时针方向，从而导致类似的圆偏振度反转，这与图3c、d中 t(2+1)LG-顺时针和 t(1+2)LG-顺时针的光谱一致。由于圆偏振度在 $\sigma_v(x\text{-}z)$ 和 $C_2(y)$ 操作下均为奇函数，施加组合操作 $\sigma_v(x\text{-}z)C_2(y)$ 或 $C_2(y)\sigma_v(x\text{-}z)$ 会导致两次符号反转，因此圆偏振度保持不变。因此，具有相同扭转角的 t(m+n)LG-顺时针和 t(n+m)LG-逆时针具有相同的圆偏振度。这些发现表明，非对称堆叠的GMS中圆偏振度的符号由其堆叠几何构型之间的空间变换关系决定。

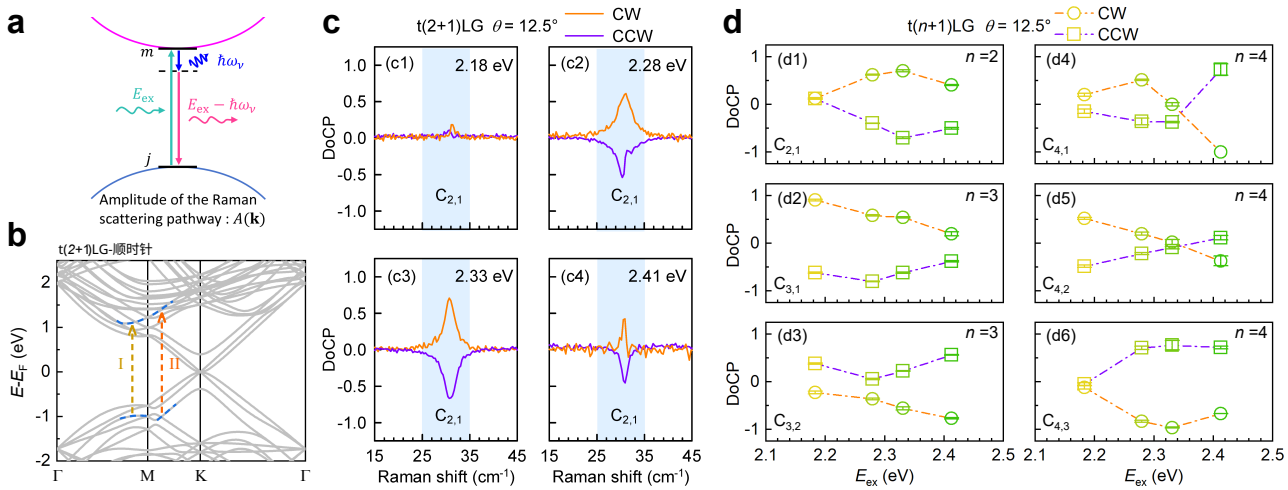

图4. 非对称堆叠的GMS中圆偏振度的激发能依赖性。(a) 一阶拉曼过程的拉曼散射路径示意图，j 和 m 表示能带结构中的电子态。$\hbar\omega_\nu$ 对应于声子模 ν的声子能量。(b) t(2+1)LG-顺时针（$\theta = 13.2°$）的计算能带结构。箭头（I和II）表示联合态密度中范霍夫奇点能量范围内不同的光学跃迁路径。(c) 激发能为(c1) 2.18 eV、(c2) 2.28 eV、(c3) 2.33 eV和(c4) 2.41 eV时，t(2+1)LG-顺时针和t(2+1)LG-逆时针中$C_{2,1}$ 声子的DoCP光谱。(d) 在不同激发能 $n = 2$、3和4下，t($n+1$)LG-顺时针和t($n+1$)LG-逆时针中C声子圆偏振度的激发能依赖性。由虚线（引导线）连接的彩色圆形标记对应于实验测量，其中每个标记的颜色编码激发能（2.18 eV、2.28 eV、2.33 eV和2.41 eV）。误差条表示由样品不均匀性和测量误差引起的圆偏振度值的传播合成不确定度，基于每个样品的两个独立位点。

激发能对DoCP的调制

上述分析表明，在范霍夫奇点区域内共振激发时产生的复拉曼张量元，是 t($m+n$)LG 中观测到显著圆偏振度的原因。在三阶微扰理论中，一阶拉曼过程的强度等于所有散射振幅在 k 空间中的相干和的模平方，记作 $A(\mathbf{k})$，如图 4a 所示。[39, 44–46] 在 t($m+n$)LG 中，联合态密度范霍夫奇点区域内的光学跃迁路径主导了这一总和，[24, 37] 例如图 4b 中的路径 I 和 II。因此，在共振范围内，激发能的微小变化也会显著重塑相干拉曼响应，导致复拉曼张量元的相对大小和相位发生显著变化（详情见补充材料注释4）。根据式 3，这些变化直接决定手性声子的圆偏振度，尤其是非对称堆叠的GMS中的 C 声子。

为检验这一图景，我们在四种激发能（2.18、2.28、2.33 和 2.41 eV）下，对 t($m+n$)LGs 进行了 HRRS测量，覆盖范霍夫奇点共振区域。如补充图S6所示，所有 C 声子的拉曼强度均随激发能显著变化。例如，在 t(2+1)LG-顺时针（$\theta = 12.5°$）中，2.28 eV 时 $C_{2,1}$ 声子的 $\sigma^+\sigma^-$ 强度约为 2.41 eV 时的 30 倍。圆偏振度同样对激发能高度敏感。在同一样品中，$C_{2,1}$ 声子的圆偏振度在 2.18 eV 时几乎为零，而在 2.33 eV 时升至 0.70（图 4c）。在 t(4+1)LG-顺时针（$\theta = 12.5°$）中，$C_{4,1}$ 和 $C_{4,2}$ 声子的圆偏振度发生符号反转，而 $C_{4,3}$ 声子的圆偏振度则在 2.18–2.41 eV 范围内从接近零变为接近 1，这与较厚堆叠结构具有更丰富的共振电子结构相一致（图 S7）。此外，在每种激发能下，扭转方向相反的样品呈现出几乎相反的圆偏振度值，这与前文所确立的相应堆叠几何构型之间的对称关系相符。这些结果表明，在范霍夫奇点共振范围内调节激发能，可有效调控手性声子的拉曼强度和圆偏振度，为连续重构非对称堆叠的GMS中的手性声子响应提供了直接的光学调控手段。

通过能带工程实现圆偏振度调制

在 t($m+n$)LG 中，扭转角为调控共振电子结构提供了一个强有力的手段。其微观起源在于，扭转相邻石墨烯组分所生成的依赖于扭转角的莫尔′超晶格，该超晶格产生了依赖于扭转角的范霍夫奇点和光学共振区域。[22, 23, 47] 在三阶微扰

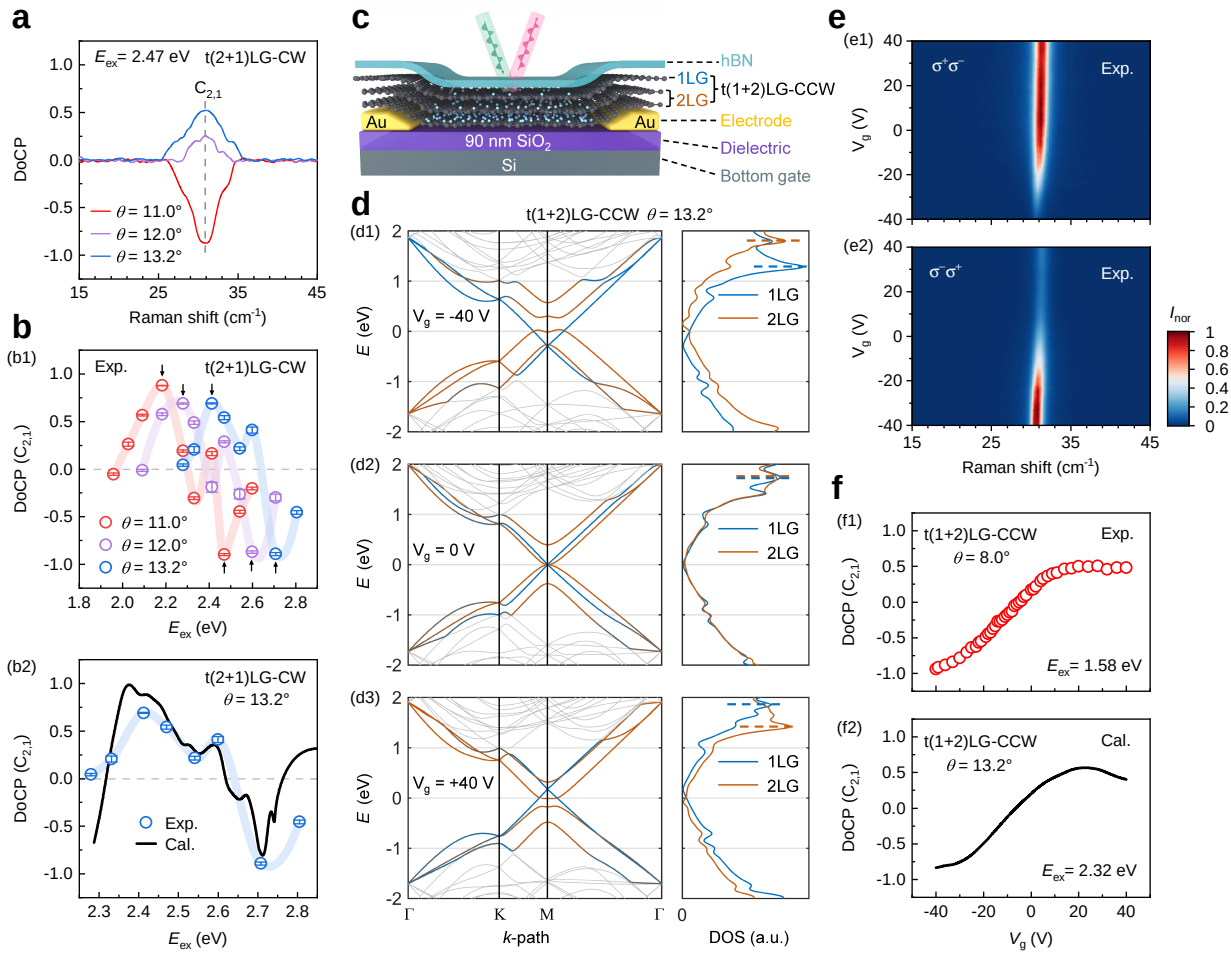

图 5. t($m+n$)LG 中 DoCP调制的能带工程。(a) t(2+1)LG-顺时针中 $C_{2,1}$ 声子的 DoCP 光谱，分别对应 11.0°、 12.0° 和 13.2° 处的 θ。(b) 范霍夫奇点共振区域内 DoCP 曲线随激发能的变化。(b1) t(2+1)LG-顺时针中 $C_{2,1}$ 声子的 DoCP 曲线，分别对应 $\theta = 11.0°$（红色圆圈）、 12.0°（紫色圆圈）和 13.2°（蓝色圆圈）。误差条表示基于每个样品三个独立测量位置，考虑样品不均匀性和测量误差后得到的 DoCP 综合不确定度传播结果。半透明引导线显示 DoCP 随激发能的变化趋势。箭头标出各扭转角对应的圆偏振度最大值和最小值。(b2) t(2+1)LG-顺时针在 $\theta = 13.2°$ 下的实验数据（Exp.，蓝色圆圈）与计算结果（Cal.，黑色实线）对比。(c) 用于电场调控 t($m+n$)LG 能带结构的场效应晶体管示意图。以 t(1+2)LG-逆时针为例，图中展示了正 V_g 下的层分辨载流子分布。(d) 施加 V_g 时，t(1+2)LG-逆时针（$\theta = 13.2°$）的能带结构和态密度（DOS），分别对应 (d1) −40 V、(d2) 0 V 和 (d3) +40 V。(e) t(1+2)LG-逆时针（$\theta = 8.0°$）在 (e1) $\sigma^+\sigma^-$ 和 (e2) $\sigma^-\sigma^+$ 配置下随栅极电压变化的拉曼强度映射（实验结果）。右侧色条表示归一化拉曼强度（I_{nor}），红色/蓝色分别表示强度值高/低。(f) t(1+2)LG-逆时针中 $C_{2,1}$ 声子的圆偏振度随 V_g 的变化。(f1) t(1+2)LG-逆时针（$\theta = 8.0°$）在 $E_{ex} = 1.58$ eV 下的实验结果；(f2) t(1+2)LG-逆时针（$\theta = 13.2°$）在 $E_{ex} = 2.32$ eV 下的计算结果。

拉曼框架中，这些依赖于扭转角的范霍夫奇点重塑了共振拉曼路径，从而改变了拉曼张量元的大小及相对相位。式3因此表明，C 声子的圆偏振度应可通过扭转角进行调控。为验证这一预期，我们制备了 t(2+1)LG-顺时针样品，其 $\theta = 11.0°$、12.0°和 13.2°，并测量了其在 $E_{ex} = 2.47$ eV 下对应的圆偏振度（图 5a）。随着扭转角从11.0° 增加至 13.2°，$C_{2,1}$ 声子的圆偏振度从 −0.90 变为 0.54。当激发能进一步扫描经过范霍夫奇点区域时，三个样品均表现出相似的圆偏振度演化，而整个 DoCP 曲线随着扭转角增大几乎系统性地发生蓝移（图 5(b1)）。这一行为与底层范霍夫奇点共振范围的移动相一致，并表明 DoCP 曲线直接追踪了依赖于扭转角的共振电子结构。同样的趋势在更厚的非对称堆叠中仍然存在：t(4+1)LG-顺时针（$\theta = 13.2°$）中 $C_{4,1}$，$C_{4,2}$，和 $C_{4,3}$ 声子的 DoCP 曲线相较于 $\theta = 12.5°$ 均发生蓝移（图 S7）。此外，通过紧束缚计算获得的 DoCP–E_{ex} 曲线（见方法）与

t(2+1)LG-CW 和 t(4+1)LG-CW 在 $\theta = 13.2°$ 下的实验结果（图 5(b2) 和图 S8），支持这样一种观点：扭转角主要通过移动莫尔诱导的范霍夫奇点及相关的共振拉曼路径来调节圆偏振度。

共振电子结构也可以通过电学方式调节。图 5c 展示了一个基于 t(1+2)LG-CCW 的场效应晶体管。由于石墨烯对垂直电场的屏蔽作用很强，但并不完全，施加的栅极电压（V_g）会在不同石墨烯层中诱导出不均等的载流子密度，从而形成具有层依赖性的层间电势分布。[48, 49]在计算中，我们通过在零栅压下的瓦尼尔哈密顿量中加入具有层依赖性的静态电势，即斯塔克效应项，来纳入这一效应（见方法）。这种电场诱导的电势重新分布会改变单层石墨烯与 2LG衍生能带的相对对齐关系，并重构共振结构。图 5d 展示了 t(1+2)LG-CCW（$\theta = 13.2°$）在 $V_g = -40$、0 和 $+40$ V 下计算得到的能带结构及相应的态密度。与单层石墨烯和双层石墨烯组分相关的能带在栅极偏压下呈现显著的相对位移，导致相应的范霍夫奇点特征分裂。这项分析表明，栅极电压可以有效调节 C 声子的拉曼强度和圆偏振度。

这一图像得到对 t(1+2)LG-逆时针场效应晶体管进行的栅压依赖 HRRS测量的支持。在$E_{ex} = 1.58$ eV 下，$C^{2,1}$ 声子的拉曼强度在 $\sigma^+\sigma^-$和 $\sigma^-\sigma^+$ 两种构型下均表现出显著的栅压依赖性；当栅极电压从 -40扫描至 $+40$V 时，提取的圆偏振度从 -0.9变化至 0.5（图 5e 和图 5(f1)）。伴随出现的微小声子频移与载流子掺杂通过栅压调控层间耦合的情况相符。[50] 作为对比，我们针对一个具有 $\theta = 13.2°$ 、扭转角为 t(1+2) 的代表性共格 LG-逆时针结构，在 $E_{ex} = 2.32$ eV 下计算了栅压依赖的圆偏振度（图 5(f2)）。尽管实验与计算所用的扭转角和激发能的绝对值不同，但我们有意选择了二者，使其处于密切对应的共振区间，这一点可由二者极为相似的零场圆偏振度值看出（见图 S9）。在这些条件下，计算得到的 $C^{2,1}$ 声子的圆偏振度随栅极电压的变化与实验趋势吻合良好。综上，这些结果表明，能带工程无论通过扭转角调控的范霍夫奇点共振，还是通过电场诱导的能带重构，都能有效地重新调控非对称堆叠的GMS中手性C声子的响应。

III. 结论

总之，通过堆叠几何设计、共振激发选择和能带工程，可以高度灵活地重构非对称堆叠的GMS中的手性声子。对 t(m+n)LGs 进行的 HRRS测量显示，层间手性 C 声子具有显著的圆偏振度，而 t(n+n)LGs 则未表现出这种效应。结合第一性原理计算的手性声子拉曼张量分析表明，界面 C_2 对称性破缺与范霍夫奇点区域内的拉曼共振协同作用，使 C 声子产生圆偏振度；该分析也解释了为何层间 C 声子的响应远强于层内主导的 G 声子。通过改变激发能和扭转角，圆偏振度几乎可以在从 -1 到 1 的整个范围内调节。此外，电场栅控可通过重构共振电子结构，实现显著且可逆的原位调制。这些结果确立了非对称堆叠的GMS作为调控手性声子的可重构平台，并为基于手性声子的光电和量子器件功能开辟了新机遇。

IV. 方法

有关拉曼测量、样品与器件制备以及计算方法的更多实验细节，详见补充材料。

[1] L. Zhang 和 Q. Niu，声子的角动量与爱因斯坦–德哈斯效应，《物理评论快报》**112**，085503（2014年）。[2] L. Zhang 和 Q. Niu，单层六角晶格高对称点处的手性声子，《物理评论快报》**115**，115502（2015年）。[3] H. Zhu、J. Yi、M.-Y. Li、J. Xiao、L. Zhang、C.-W. Yang、R. A. Kaindl、L.-J. Li、Y. Wang 和 X. Zhang，手性声子的观测，《科学》**359**，579（2018年）。[4] T. Wang、H. Sun、X. Li 和 L. Zhang，手性声子：预测、验证与应用，《纳米快报》**24**，4311（2024年）。

[5] D. M. Juraschek, R. M. Geilhufe, H. Zhu, M. Basini, P. Baum, A. Baydin, S. Chaudhary, M. Fechner, B. Flebus, G. Grissonnanche, A. I. Kirilyuk, M. Lemeshko, S. F. Maehrlein, M. Mignolet, S. Murakami, Q. Niu, U. Nowak, C. P. Romao, H. Rostami, T. Satoh, N. A. Spaldin, H. Ueda, and L. Zhang, 手性声子，Nature Physics 21, 1532 (2025)。[6] H. Chen, W. Wu, S. A. Yang, X. Li, and L. Zhang, kagome 晶格中的手性声子，Physical Review B 100, 094303 (2019)。[7] Y. Liu, C.-S. Lian, Y. Li, Y. Xu, and W. Duan, Kekul´e 晶格中的声子赝自旋与拓扑效应，《物理评论快报》119, 255901 (2017)。[8] Q. Wang, S. Li, J. Zhu, H. Chen, W. Wu, W. Gao, L. Zhang, and S. A. Yang, 具有 C_4 对称性的晶格中的手性声子，Physical Review B 105, 104301 (2022)。[9] N. Suri, C. Wang, Y. Zhang, and D. Xiao, 莫尔´超晶格中的手性声子，《纳米快报》21, 10026 (2021)。[10] T. Zhang, Z. Huang, Z. Pan, L. Du, G. Zhang, and S. Murakami, 手性晶体中的外尔声子，《纳米快报》23, 7561 (2023)。[11] E. Oishi, Y. Fujii, and A. Koreeda, 在 α **109**, -石英中选择性观测对映异构手性声子，Physical Review B ( )。[12] H. Ueda, M. Garc´ıa-Fern´andez, S. Agrestini, C. P. Romao, J. van den Brink, N. A. Spaldin, K.-J. Zhou, and U. Staub, 通过 X 射线探测石英中的手性声子，Nature 618, 946 (2023)。[13] S. R. Tauchert, M. Volkov, D. Ehberger, D. Kazenwadel, M. Evers, H. Lange, A. Donges, A. Book, W. Kreuzpaintner, U. Nowak, and P. Baum, 偏振声子在超快退磁过程中携带角动量，Nature 602, 73 (2022)。[14] Z. Li, T. Wang, C. Jin, Z. Lu, Z. Lian, Y. Meng, M. Blei, M. Gao, T. Taniguchi, K. Watanabe, T. Ren, T. Cao, S. Tongay, D. Smirnov, L. Zhang, and S.-F. Shi, 单层二硒化钨中的动量暗间谷激子经手性声子激发变亮，ACS Nano 13, 14107 (2019)。[15] R. Sasaki, Y. Nii, and Y. Onose, 通过从表面声波向铁磁自旋磁矩传递角动量来控制磁化，Nat. Commun. 12, 2599 (2021)。[16] S. G. Jeong, J. Kim, A. Seo, S. Park, H. Y. Jeong, Y.-M. Kim, V. Lauter, T. Egami, J. H. Han, and W. S. Choi, 合成磁性氧化物异质结构中通过手性声子实现非常规层间交换耦合，Sci. Adv. 8, eabm4005 (2022)。[17] F. Wu, S. Bao, J. Zhou, Y. Wang, J. Sun, J. Wen, Y. Wan, and Q. Zhang, 极性反铁磁体中涨落增强的声子磁矩，Nat. Phys. 19, 1868 (2023)。[18] M. Born and K. Huang,《晶格动力学理论》，牛津大学出版社，牛津 (1996)。[19] Y. Gao, Y. Pan, J. Zhou, and L. Zhang, 手性声子介导的高温超导，Physical Review B 108, 064510 2023( )。[20] H. Chen, W. Wu, J. Zhu, Z. Yang, W. Gong, W. Gao, S. A. Yang, and L. Zhang, 手性晶体中的手性声子二极管效应,《纳米快报》22, 1688 (2022)。[21] X. Chen, X. Lu, S. Dubey, Q. Yao, S. Liu, X. Wang, Q. Xiong, L. Zhang, and A. Srivastava, 单光子与手性声子的纠缠，原子级薄 WSe_2, ,《自然·物理》15, 221 (2019)。[22] G. Li, A. Luican, J. Lopes dos Santos, A. Castro Neto, A. Reina, J. Kong, and E. Andrei, 扭转石墨烯层中范霍夫奇点的观测，《自然·物理》6, 109 (2010)。[23] I. Brihuega, P. Mallet, H. Gonz´alez-Herrero, G. Trambly de Laissardi`ere, M. M. Ugeda, L. Magaud, J. M. G´omez-Rodr´ıguez, F. Yndur´ain, and J. Y. Veuillen, 通过扫描隧道显微镜和理论分析揭示扭转双层石墨烯中范霍夫奇点的内禀稳健特性，《物理评论快报》109, 196802 (2012)。[24] J.-B. Wu, X. Zhang, M. Ij¨as, W.-P. Han, X.-F. Qiao, X.-L. Li, D.-S. Jiang, A. C. Ferrari, and P.-H. Tan, 扭转多层石墨烯的共振拉曼光谱，Nat. Commun. 5, 5309 (2014)。[25] 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, and P. Jarillo-Herrero, 魔角石墨烯超晶格半填充时的关联绝缘体行为，Nature 556, 80 (2018)。[26] E. Codecido, Q. Wang, R. Koester, S. Che, H. Tian, R. Lv, S. Tran, K. Watanabe, T. Taniguchi, F. Zhang, M. Bockrath, and C. N. Lau, 魔角以下扭转双层石墨烯中的关联绝缘态和超导态，Sci. Adv. 5, eaaw9770 (2019)。[27] M. Serlin, C. Tschirhart, H. Polshyn, Y. Zhang, J. Zhu, K. Watanabe, T. Taniguchi, L. Balents, and A. Young, 莫尔´异质结构中的内禀量子反常霍尔效应，《科学》367, 900 (2020)。[28] T. Li, S. Jiang, B. Shen, Y. Zhang, L. Li, Z. Tao, T. Devakul, K. Watanabe, T. Taniguchi, L. Fu, J. Shan, and K. F. Mak, 由交织莫尔´能带产生的量子反常霍尔效应，Nature 600, 641 (2021)。[29] Y. Cao, V. Fatemi, S. Fang, K. Watanabe, T. Taniguchi, E. Kaxiras, and P. Jarillo-Herrero, 魔角石墨烯超晶格中的非常规超导，Nature 556, 43 (2018)。[30] M. Yankowitz, S. Chen, H. Polshyn, Y. Zhang, K. Watanabe, T. Taniguchi, D. Graf, A. F. Young, and C. R. Dean, 调控扭转双层石墨烯中的超导性，《科学》363, 1059 (2019)。[31] Y. Tatsumi, T. Kaneko, and R. Saito, 螺旋度依赖的拉曼和瑞利散射中的角动量守恒定律，Physical Review B 97, 195444 (2018)。[32] J. D. Bernal, 石墨的结构，Proc. R. Soc. A 106, 749 (1924)。[33] K. S. Novoselov, A. K. Geim, S. V. Morozov, D.-E. Jiang, Y. Zhang, S. V. Dubonos, I. V. Grigorieva, and A. A. Firsov, 原子级薄碳膜中的电场效应，《科学》306, 666 (2004)。[34] P. H. Tan, W. P. Han, W. J. Zhao, Z. H. Wu, K. Chang, H. Wang, Y. F. Wang, N. Bonini, N. Marzari, N. Pugno, G. Savini, A. Lombardo, and A. C. Ferrari, 多层石墨烯的剪切模，Nat. Mater. 11, 294 (2012)。[35] T. Yin, K. A. Ulman, S. Liu, A. Granados del ´Aguila, Y. Huang, L. Zhang, M. Serra, D. Sedmidubsky, Z. Sofer, S. Y. Quek, and Q. Xiong, $CrBr_3$ 2D 磁体中的手性声子与巨磁光效应，Adv. Mater. 33, 2101618 (2021)。

[36] O. Minakova, C. Paiva, M. Frenzel, M. S. Spencer, J. M. Urban, C. Ringkamp, M. Wolf, G. Mussler, D. M. Juraschek, and S. F. Maehrlein, 《晶格模之间角动量传递的观测》, Nature Physics, 10.1038/s41567- 026-03274-8（2026年）。[37] J. B. Wu, Z. X. Hu, X. Zhang, W. P. Han, Y. Lu, W. Shi, X. F. Qiao, M. Ijias, S. Milana, W. Ji, A. C. Ferrari, and P. H. Tan, 《通过层间呼吸模的共振拉曼光谱研究扭转多层石墨烯中的界面耦合》, ACS Nano 9, 7440（2015年）。[38] S. G. Drapcho, J. Kim, X. Hong, C. Jin, S. Shi, S. Tongay, J. Wu, and F. Wang, 《单层 MoS_2，在谷激子共振处拉曼选择定则的表观失效》, Physical Review B 95, 165417（2017年）。[39] R. Loudon, 《晶体中的拉曼效应》, Advances in Physics 13, 423（1964年）。[40] M. A. Pimenta, G. C. Resende, H. B. Ribeiro, and B. R. Carvalho, 《低对称二维材料中的偏振拉曼光谱：角分辨实验与复数张量元》, Physical Chemistry Chemical Physics 23, 27103（2021年）。[41] S. Han, Y. Zhao, N. T. Hung, B. Xu, R. Saito, J. Zhang, and L. Tong, 《圆偏振光照射下黑磷螺旋度变化拉曼光谱中的复拉曼张量》, Journal of Physical Chemistry Letters 13, 1241（2022年）。[42] R. Mei, M.-L. Lin, H. Wu, L.-S. Chen, Y.-M. Shi, Z. Wei, and P.-H. Tan, 《范德华异质结构中层间声子的层间键极化率模型》, Nanoscale 16, 4004（2024年）。[43] V. Carozo, C. M. Almeida, B. Fragneaud, P. M. Bedˆe, M. V. O. Moutinho, J. Ribeiro-Soares, N. F. Andrade, A. G. Souza Filho, M. J. S. Matos, B. Wang, M. Terrones, R. B. Capaz, A. Jorio, C. A. Achete, and L. G. Can¸cado, 《石墨烯超晶格拉曼光谱中的共振效应》, Physical Review B 88, 085401（2013年）。[44] C.-F. Chen, C.-H. Park, B. W. Boudouris, J. Horng, B. Geng, C. Girit, A. Zettl, M. F. Crommie, R. A. Segalman, S. G. Louie, and F. Wang, 《调控石墨烯中的非弹性光散射量子通道》, Nature 471, 617（2011年）。[45] X. Chen, S. Reichardt, M.-L. Lin, Y.-C. Leng, Y. Lu, H. Wu, R. Mei, L. Wirtz, X. Zhang, A. C. Ferrari, and P.-H. Tan, 《调控石墨烯中的拉曼散射量子干涉通道》, ACS Nano 17, 5956（2023年）。[46] N. T. Hung, J. Huang, Y. Tatsumi, T. Yang, and R. Saito, 《QERaman：一种基于 Quantum ESPRESSO 计算共振拉曼光谱的开源程序》, Computer Physics Communications 295, 108967（2024年）。[47] R. Bistritzer and A. H. MacDonald, 《扭转双层石墨烯中的莫尔´能带》, 美国国家科学院院刊 108, 12233（2011年）。[48] P. Moon, Y.-W. Son, and M. Koshino, 《层间势不对称条件下扭转双层石墨烯的光学吸收》, Physical Review B 90, 155427（2014年）。[49] H. Zhang, Q. Li, Y. Park, Y. Jia, W. Chen, J. Li, Q. Liu, C. Bao, N. Leconte, S. Zhou, Y. Wang, K. Watanabe, T. Taniguchi, J. Avila, P. Dudin, P. Yu, H. Weng, W. Duan, Q. Wu, J. Jung, and S. Zhou, 《扭转单层-双层石墨烯中二分可调场电子结构的观测》, Nature Communications 15, 3737（2024年）。[50] X. Zhang, T. Zhu, J. Huang, Q. Wang, X. Cong, X. Bi, M. Tang, C. Zhang, L. Zhou, D. Zhang, T. Su, X. Dai, K. Meng, Z. Li, C. Qiu, W. W. Zhao, P. H. Tan, H. Zhang, and H. Yuan, 《利用电双层界面调控非中心对称 3R-MoS_2 中的层间耦合》, ACS Appl. Mater. Interfaces 12, 46900（2020年）。