



石墨烯莫尔异质结中局域-巡游电子的竞争和耦合

陈墨雨¹, 谢永勤¹, 程斌^{2*}, 梁世军^{1*}, 缪峰^{1*}

1. 南京大学类脑智能科技研究中心, 南京 210093;

2. 南京理工大学物理学院, 南京 210094

*联系人, 程斌, E-mail: bincheng@njtu.edu.cn; 梁世军, E-mail: sjliang@nju.edu.cn; 缪峰, E-mail: miao@nju.edu.cn

收稿日期: 2024-08-08; 接受日期: 2024-09-11; 网络出版日期: 2024-09-27

国家自然科学基金(编号: 12322407, 62122036, 62034004, 61921005, 12074176)资助项目

摘要 由二维量子材料构筑的范德华异质结展现出丰富的界面衍生量子态, 并具有出色的物态可调性, 不但为探索新奇量子物态和物态演化规律提供强大的可调平台, 也为开发新原理电子器件功能提供丰富的材料库. 本文将结合我们过去几年在石墨烯莫尔异质结体系中的电子输运工作, 详细讨论其中的巡游电子与局域电子之间的竞争与耦合作用对新物态的形成与演化的影响, 以及对新原理器件设计所提供的新思路. 首先通过对巡游-局域电子耦合强度的原位调控, 我们实现了对电子晶体的量子融化过程的高精度观测, 首次观测到量子两步临界性和量子赝临界性等新奇量子临界行为, 展示了石墨烯莫尔异质结在可调量子临界行为固态量子模拟上的巨大潜力. 其次, 分层的巡游电子和局域电子之间的耦合作用可以诱导出非常规电子型铁电, 其铁电的极化强度具有准连续性, 有望满足高精度神经形态计算中对可精准调控多态的需求. 特别地, 电子型铁电可以使得铁电与其他量子物态例如陈绝缘态共存, 这为设计开发噪声免疫神经形态计算等全新物理计算硬件提供了独特的平台.

关键词 二维材料, 电子输运, 物态调控, 物理计算

PACS: 71.27.+a, 73.22.Pr, 73.21.Cd, 85.35.-p, 73.23.-b

1 引言

随着物联网与智能网联汽车等新兴行业的发展, 我们正在快速地步入人工智能时代. 这个时代最大的挑战之一就是每天产生的数据量和对应的计算需求呈指数级增长, 而传统的计算能力, 即算力增长缓慢, 这也导致了计算需求与实际算力之间存在巨大的缺口. 若要从根本上解决这项挑战, 填补愈发严重的算力缺口, 我们需要换道发展, 推动未来计算技术的研究^[1-3].

其中一条有潜力的技术路线是发展可直接处理物理世界真实信号的计算器件. 与传统计算机所处理的二进制数字信息不同, 物理世界是连续变化的, 相应的信息表现为时间域上连续变化的模拟信号. 因此, 在物理系统中, 可以将输入系统的物理量所对应的模拟信号作为待处理的信息, 而输出的物理量作为处理后的信息, 这样物态调控的过程就可以代表信息处理的操作, 如图1所示. 基于该原理, 信息可被物理系统中的物态表示(也称编码), 物态调控能够实现不同物态之

引用格式: 陈墨雨, 谢永勤, 程斌, 等. 石墨烯莫尔异质结中局域-巡游电子的竞争和耦合. 中国科学: 物理学 力学 天文学, 2024, 54: 127301
Chen M, Xie Y, Cheng B, et al. Competition and coupling effect between localized and itinerant electrons in graphene moiré heterostructures (in Chinese). Sci Sin-Phys Mech Astron, 2024, 54: 127301, doi: [10.1360/SSPMA-2024-0321](https://doi.org/10.1360/SSPMA-2024-0321)

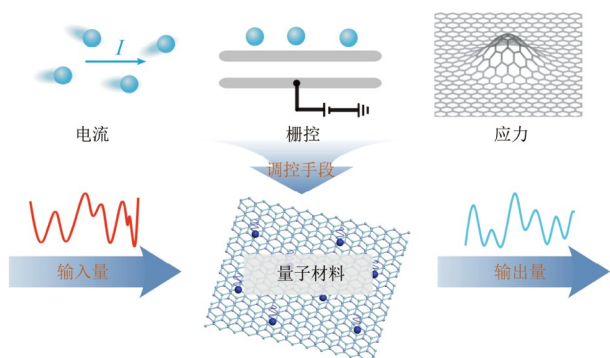


图 1 (网络版彩图)物理计算概念的示意图. 量子材料表现出高度可调的丰富物性, 可以被用作实现物理计算的载体, 其中输入量(如电压、电流等)代表待处理的信息, 输出量代表被处理后的信息, 可调的物态代表信息处理操作, 不同的操作对应于不同物态的物理状态变量. 利用电流(蓝色箭头表示电流方向)、静电栅控和应力等物态调控手段, 能够实现量子材料在不同物态之间的演化, 这种演化可以被看作是一种计算过程

Figure 1 (Color online) A conceptual diagram of physical computing. Quantum materials are highly tunable systems that often exhibit complex evolution between emergent properties, making them an ideal platform for physical computing applications. Here, the input physical quantities (such as voltage, current) encode the information to be processed, and the output quantities encode the processed information. The tunable quantum states represent the operations involved in information processing, which is differentiated by the physical state variables of the system. Common tuning knobs, including electrical current, indicated by blue arrow, electrostatic gating and strain, facilitates evolution between different states, analogous to a computing process.

间的演化, 而这种演化可以被看作是一种计算过程. 因此要实现这种物理计算, 需要探索具有可被用来编码的物态和独特物态调控特性的物理系统.

同时具有巡游电子和局域电子的物理系统在实现物理计算上具有独特优势和潜力. 在凝聚态物理领域, 巡游电子-局域电子的竞争与耦合作用所衍生出的丰富的物理效应是过去的几十年凝聚态物理学领域最重要的研究方向之一^[4-6]. 经典能带理论认为, 在周期性晶格中原本孤立的原子能级分裂并形成连续的能带结构, 在费米面处的能带电子具有有限的动量和有效质量, 具有巡游特性. 电子关联的强弱变化可以驱动电子巡游与局域特性的转变: 当电子关联作用强时, 会出现各种丰富的关联绝缘态^[7,8], 例如莫特绝缘态、维格纳晶体、反铁磁绝缘体等; 而当电子关联效应较弱时, 电子的行为可以很好地被朗道费米液体理论描述^[4,9]. 最受到关注的区域出现在关联绝缘态和费米液体的边界处^[5,6,10-12], 在这里巡游电子与局域电子之间具有复杂的竞争与耦合作用机制(图2), 使得电子具有

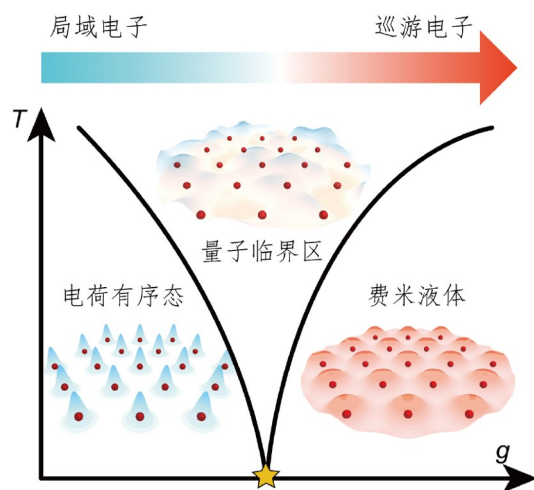


图 2 (网络版彩图)巡游电子-局域电子竞争的典型相图. 在外场 g 的驱动下, 电子系统从电荷有序态经量子临界区域, 转变到费米液体态(黑色实线表示不同相之间的边界), 在零温下($T=0$), 电荷有序态和费米液体态的分界点称为量子临界点(图中金色五角星). 箭头表示在外场作用下, 体系中局域电子向巡游电子转变. 插图示意了不同电子相中电子波函数的差异: 在电荷有序态中, 电子波函数局域地分布在孤立的位点上(左下); 在费米液体中, 电子波函数接近平面波的叠加(右下); 量子临界区域的电子则展现出复杂的行为(中上). 这种连续相变的相图, 展现了局域电子与巡游电子之间的竞争机制

Figure 2 (Color online) Phase diagram of competing itinerant electrons and localized electrons. As an external field g is varied, the electronic system transitions from a charge-ordered state through a quantum critical region to a Fermi liquid state (solid black lines denote boundaries between different phases). At zero temperature ($T=0$), the boundary between the charge-ordered state and the Fermi liquid state is marked as the quantum critical point (represented by a golden pentagon in the diagram). Arrows indicate the transition of localized electrons to itinerant electrons under the external field. Illustrations depict the differences in electronic wavefunctions in different electronic phases: in the charge-ordered state, electronic wavefunctions are localized at isolated sites (bottom left); in the Fermi liquid state, electronic wavefunctions resemble superpositions of plane waves (bottom right); electrons in the quantum critical region exhibit complex behaviors (top center). This phase diagram of continuous phase transitions illustrates the competition between localized and itinerant electrons.

局域-巡游二重性, 产生大量无法用单电子图像所描绘的关联量子态和量子现象, 包括量子临界性和临界态、非常规超导、近藤效应、量子磁性、自发极化态、非费米液体等. 传统上, 存在巡游电子和局域电子复杂作用的材料体系主要包括高温超导体、重费米子体系、过渡金属氧化物体系等^[13-15], 这其中d或者f轨道电子具有主导性的作用, 提供了巡游电子和局域电子的主要来源. 然而, 在这些重金属化合物体系中, 需要在样品合成的过程中通过化学掺杂实现载流子密度

的调整, 而且局域电子和巡游电子之间耦合作用的调控依赖于将其中的过渡金属元素进行替换, 不但会极大影响样品的质量, 并且难以实现载流子密度与关联强度的精准原位调控, 这限制了对局域电子和巡游电子相互作用下的新物态和物理现象的探索与调控.

近年来, 具有长波长莫尔超晶格结构的转角石墨烯体系作为一种高度可调的固态量子平台, 在探索与调控新奇关联物理现象上展现出前所未有的巨大潜力^[16-19]. 最近的研究表明^[6,20,21], 这个体系中局域电子和巡游电子的竞争与耦合机制对于非常规超导、陈绝缘态、轨道磁性、非常规铁电等的形成具有重要的作用. 具体来说, 通过扭转双层石墨烯形成莫尔超晶格, 将石墨烯的能带“折叠”到“迷你”布里渊区中, 并在特定角度, 例如“魔角”时获得增强的层间量子相干效应. 这种量子相干效应在具有不同堆叠序的超晶格区域具有显著差异, 使得电子局域在实空间中具有特定堆叠序的离散位点(如转角双层石墨烯中的AA区域, 转角双层-双层石墨烯中的AB-BA区域等). 这些局域电子的“孤岛”形成了新的人工“原子”, 电子可以在这些“人工原子”之间跃迁. 因此, 莫尔超晶格体系能够“模拟”一个具有新的晶格结构的电子系统, 该系统同时表现出巡游电子和局域电子的特性. 这种特性被认为是该体系中出现关联绝缘态、非常规超导、轨道磁性等新奇关联量子态的根本原因. 特别地, 这些人工晶格中巡游电子和局域电子之间的关联强度能够通过电场被连续地控制. 相比于传统强关联材料中通过掺杂和替代原子来实现物态调控的方式相比, 莫尔体系中通过栅压控制原位调控掺杂和关联强度的能力, 不但保证了样品的高质量, 还极大提升了物态调控的调控精度, 为研究量子相变行为提供了可靠的平台. 值得注意的是, 在某些特定构型的莫尔异质结体系中, 这些“人工晶格”上的多电子行为遵循与经典的强关联理论模型(例如Hubbard模型等)相同的物理规律, 加之具有出色的调控能力, 使得莫尔异质结体系展现出成为研究这些强关联模型中量子相变行为固态量子模拟器的巨大潜力.

此外, 某些特定堆叠结构的莫尔异质结体系具有分层的局域-巡游电子分布, 即局域电子和巡游电子占据不同的层, 形成新奇的层间电子态. 例如在1T-TaS₂/1H-TaS₂异质结^[22]、MoTe₂/WSe₂莫尔异质结^[23]等半导体TMD莫尔异质结体系中^[24], 巡游电子和局域电子可以占据不同的层, 它们之间的层间耦合导致了許多新

物态, 包括人工重费米子、近藤晶格等. 特别的是, 范德华异质结的高度可调性, 允许通过施加层不对称的栅极电压实现不同原子层电子密度的原位调控, 进而调控巡游-局域电子之间的耦合形式和强度, 为研究巡游电子与局域电子的耦合和竞争提供了新的调控自由度. 近年来, 石墨烯/六方氮化硼(hBN)莫尔异质结中非常规铁电性的发现还促进了人们对的层分辨的巡游-局域电子相互作用机制的理解^[25-27]. 人们发现, 在hBN/双层石墨烯(BLG)/hBN异质结中, 将其中一层hBN与BLG的晶向对齐, 从而在界面形成莫尔超晶格, 进而出现非常规的铁电回滞. 霍尔测量表明, 莫尔异质结中具有共存的局域电子和巡游电子, 并且局域电子和巡游电子之间的电荷转移具有“棘轮效应”. 这种协作机制能够定性理解非常规铁电回滞和自发极化的出现. 利用局域电子-巡游电子之间的“棘轮效应”还能够展示新颖的神经形态计算应用. 这些结果表明范德华异质结体系中有丰富的巡游-局域电子耦合与竞争机制, 不但为探索电子关联导致的新奇物态提供一个高度可调的研究平台, 而且有望为新原理信息器件应用开辟新的道路.

本文将结合作者自身的相关研究, 讨论在转角石墨烯体系中局域电子与巡游电子的竞争与耦合作用带来的丰富物性, 并展示可实现的新原理器件应用. 其中, 在手性堆叠转角双层-双层石墨烯(cTDBG)体系中观测到广义维格纳晶体态, 并展示了SU(4)同位旋-扩展Hubbard模型量子模拟器, 通过原位调控电场、磁场等参量, 实现了体系内禀自由度从SU(4)到SU(2)的连续演化, 为未来开发可高密度集成、高度可调和易于读取的固体量子模拟器迈出重要一步. 此外, 在魔角双层石墨烯(MATBG)与hBN构筑的莫尔体系中观测到局域电子与巡游电子的耦合导致的非常规电子型铁电性, 并在磁场辅助下实现了非常规铁电性与陈绝缘体的共存. 进一步通过施加幅值可控的栅压脉冲, 可以实现拓扑保护边态和准连续铁电极化态之间的选择性开关, 展示出铁电陈绝缘体器件在构筑超高密度的存储器和存内计算器件中具有巨大潜力, 为实现噪声免疫的神经形态计算开辟了新的道路.

2 可调量子临界性的固态量子模拟

作为凝聚态物理中研究最多的一类相变, 金属-绝

绝缘转变展现出巡游电子与局域电子之间丰富而复杂的竞争机制. 一般来说, 当电子动能小于电子间库伦相互作用时, 系统会出现多种关联绝缘体态; 而当电子动能主导时, 系统表现为费米液体行为. 通过调控凝聚态体系的电子关联强度, 电子能够在局域电子态和巡游电子态之间连续地转变, 并在量子临界点附近存在多个竞争激烈的序参量, 系统涌现出奇异的量子相和量子临界行为, 并有可能超出朗道框架, 成为凝聚态物理学领域发现新物理规律的“沃土”. 寻找合适的材料体系, 实现局域电子与巡游电子之间竞争与耦合作用的原位调控, 是探索不同类型的量子相变及其演化过程并进一步深入理解超越朗道范式的量子临界性起源的关键. 然而, 对于传统的强关联量子材料, 通常缺乏原位调控电子关联强度的实验手段, 这阻碍了相关研究的发展. 相比而言, 在二维范德瓦耳材料莫尔异质结中, 利用栅压、垂直电场、磁场等手段精准原位调控载流子密度、关联强度、内禀自由度等, 可以实现非常规超导、莫特绝缘体、维格纳晶体等量子态的连续演化, 这为研究超越朗道框架的量子临界行为提供了前所未有的材料平台.

面向此挑战与机遇, Li等人^[7]构筑了手性堆叠的

转角双层-双层石墨烯(cTDBG)器件, 展示了电场和水平磁场可调的复杂量子临界行为, 并首次报道了可调的量子阈临界性和量子两步临界性. 实验器件由hBN封装的转角 0.75° cTDBG样品构成(图3(a)–(c)), 其中两个双层石墨烯(BLG)的手性相反, 即顶部的BLG为AB堆叠, 而底部的BLG为BA堆叠. 样品外侧有两个石墨栅极, 允许独立地调控垂直电位移场 D 和电荷填充 n . 其中, 垂直电位移场可以有效且连续地改变电子能带的宽度(图3(d)), 从而实现电子关联的原位调控. 通过电输运测量, 在填充位置为 $n = 7n_0$ 和 $7\frac{2}{3}n_0$ 处发现电阻峰(图4(a)), 其中 n_0 表示超晶格密度. 其中 $7\frac{2}{3}n_0$ 的分数填充意味着元胞是三倍扩胞的莫尔晶胞, 而在每个这样的“超胞”中容纳一个空穴. 该绝缘态的变温电阻行为符合Efros-Shklovskii型的变程跃迁模型, 说明绝缘态行为是由局域化的电子导致的, 符合广义维格纳晶体的情况. 微分电阻 $\frac{dV}{dI}$ 在直流电流 $I_{ds} = 0$ 处出现极大值(图4(b)), 随着 I_{ds} 增大而减小, 这与电流驱动的电子晶体“融化”的物理图像一致. 在水平磁场下, 电阻显著增加, 并最终在 $B_{||} = 12$ T时增大约20倍, 这是因为在大

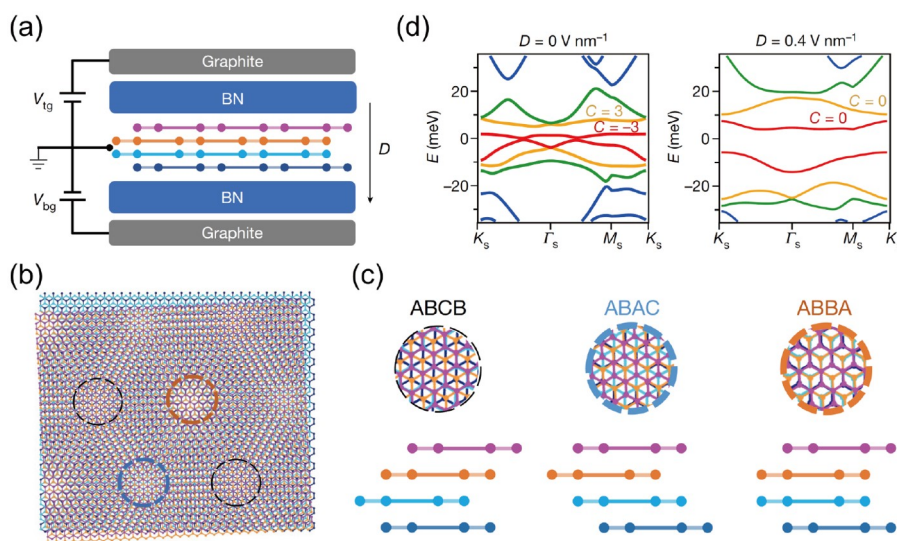


图 3 (网络版彩图) 0.75° 手性堆叠转角双层-双层石墨烯(cTDBG). (a) 器件结构和栅压调控示意图. (b) cTDBG莫尔超晶格的堆叠结构示意图. (c) cTDBG中不同堆叠序的俯视(上部)和侧视示意图(下部). (d) 计算的cTDBG在 $D = 0$ 和 $D = 0.4 \text{ V nm}^{-1}$ 的能带结构. 图片引自参考文献^[7], 已取得授权

Figure 3 (Color online) 0.75° twisted double bilayer graphene (cTDBG). (a) Schematic diagram of device structure and gate voltage control. (b) Stacking structure schematic of the moiré superlattice in cTDBG. (c) Top view (upper) and side view (lower) schematics of different stacking sequences in cTDBG. (d) Calculated band structures of cTDBG at $D = 0$ and $D = 0.4 \text{ V nm}^{-1}$. Copyright©2022, Springer Nature, reprinted with permission from ref. ^[7].

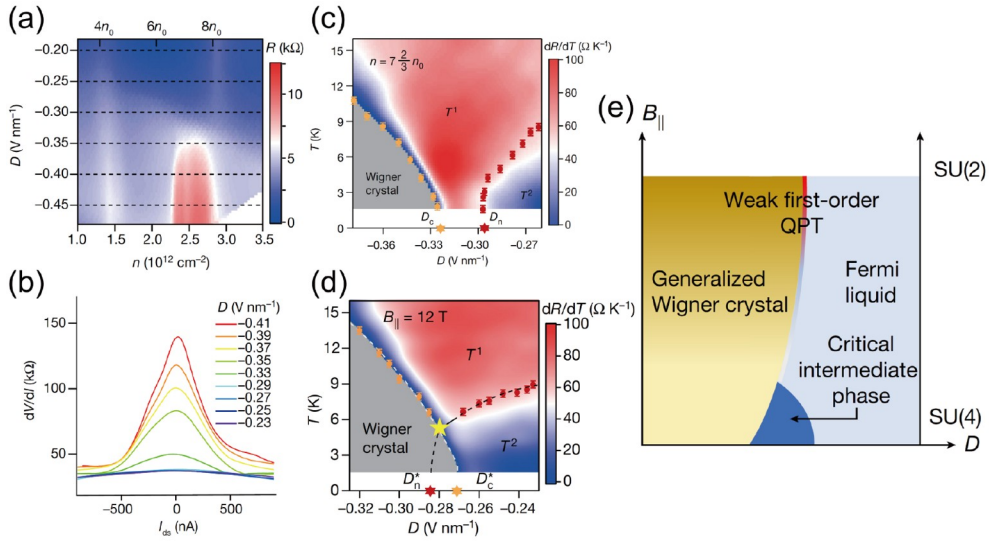


图 4 (网络版彩图)量子临界行为和相图. (a) 电阻 R 与载流子密度 n 和电位移场 D 的关系. (b) 不同 D 下, 微分电阻 $\frac{dV}{dI}$ 随电流 I_{ds} 的变化. $\frac{dV}{dI}$ 随着电流 I_{ds} 增大而减小对应于电流导致的维格纳晶体融化. (c), (d) 水平磁场 $B_{\parallel} = 0$ 和 $B_{\parallel} = 12$ T下的电阻随温度 T 的一阶导数, 灰色、蓝色和红色的区域分别对应维格纳晶体、费米液体和奇异金属态. (e) 基于cTDBG体系的扩展Hubbard模型量子模拟器所得到的实验相图. 图片引自参考文献[7], 已取得授权

Figure 4 (Color online) Quantum critical behavior and phase diagram. (a) The resistance R as a function of carrier density n and electric displacement field D . (b) Variation of differential resistance $\frac{dV}{dI}$ with drain current I_{ds} under different D values, where an increase in I_{ds} leads to a decrease in $\frac{dV}{dI}$, indicating Wigner crystal melting induced by current flow. (c), (d) The first-order derivatives of resistance with temperature T under zero horizontal magnetic field $B_{\parallel} = 0$ and $B_{\parallel} = 12$ T, respectively, with gray, blue, and red regions representing Wigner crystal, Fermi liquid, and strange metal states. (e) Phase diagram derived from an extended Hubbard model quantum simulator based on the cTDBG system. Copyright©2022, Springer Nature, reprinted with permission from ref. [7].

磁场下电子的自旋方向趋向一致, 由于泡利不相容原理, 导致局域电子在位点间跳跃受到阻碍. 这说明该关联绝缘态在零磁场和高水平磁场下分别为自旋非极化和自旋极化的维格纳晶体.

广义维格纳晶体的出现以及图3(d)右侧所示的能带计算表明, 当载流子密度填充到 $7\frac{2}{3}n_0$ 时, cTDBG体系在有限电场下的输运行为遵循扩展Hubbard模型所描述的物理. 通过连续调节垂直电位移场可原位调节体系的电子关联强度, 实现广义维格纳晶体的量子融化过程, 其在变温相图中呈现出奇异的量子两步临界性. 具体来说, 电阻变温行为在不同电位移场和温度下表现出三种不同的行为, 分别是高温下的奇异金属行为($R \propto T$), 低温强关联下的局域电子行为(广义维格纳晶体)和低温弱关联下的费米液体行为($R \propto T^2$). 量子临界标度分析表明, 从维格纳晶体到奇异金属的量子相变是连续的, 然而奇异金属相和费米液体相之

间存在另一种连续量子相变, 其临界指数的差异表明其分别属于不同的普适性类别. 此外, 这两个量子临界点中间不能进行有效的标度分析, 表明在维格纳晶体和费米液体之间存在临界中间相, 其在有限温下呈现出奇异金属相(图4(c)).

另一方面, 石墨烯中解耦的自旋和能谷自由度允许通过施加水平磁场 $B_{\parallel}$ 来极化电子自旋, 而不影响能谷自由度. 这提供了一个独特的机会来调控内禀自由度的维度, 实现从SU(4)到SU(2)的连续转变, 从而揭示体系中内禀自由度和空间电荷序之间的关联. 实验发现当 $B_{\parallel}$ 增加时, 广义维格纳晶体区域扩大, 奇异金属区收缩, 并且随着 $B_{\parallel}$ 的升高, 两个量子临界点相互靠近并交换相互位置. 在 $B_{\parallel} = 12$ T下, 奇异金属相的量子临界区域仅存在于临界温度 $T^* \approx 5.6$ K以上, 自旋在 T^* 以下完全冻结(图4(d)). 标度分析显示, 对于 T^* 以上的广义维格纳晶体区域与费米液体区域, 他们分别坍塌到各自的分支上, 然而全温度区间的标度分析不

能实现, 这表明出现了量子赝临界性. 该量子赝临界性的出现表明当cTDBG中的内禀自由度为SU(2)时, 广义维格纳晶格到费米液体的转变将经历一个弱一阶量子相变. 将该扩展Hubbard模型莫尔量子模拟器随垂直电场与水平磁场调控得到的基态相图总结为图4(e).

实验表明, 可以通过精准构筑石墨烯莫尔异质结, 使其遵循特定强关联物理模型的物理规律, 同时保持优异的物态调控能力, 因此, 石墨烯莫尔异质结具有成为强关联物理固态量子模拟器的潜力. 量子模拟器的概念最早由R. Feynman于80年代初提出, 指的是通过构建遵循相同物理规律的可控量子系统, 来模拟量子多体系统的基态和演化规律的一种计算范式. 值得注意的是, 量子模拟器在研究强关联电子系统方面展现出巨大优势, 相比之下, 即使是最强大的经典计算机也难以解决这个巨大挑战. 相比于传统的基于冷原子系统的强关联物理量子模拟器, 固态量子模拟器提供了更多物态调控的“旋钮”, 并且能够通过多种测量方式实现物态读取. 特别地, 本工作中的石墨烯莫尔量子模拟器展现出对电子强关联效应的原位精准可调性, 从而可以用于模拟强关联体系中的量子相变和量子临界行为, 而这些区域由于存在极强的量子涨落, 通常是无法通过计算获得的^[28]. 为了继续挖掘石墨烯莫尔固态量子模拟器在研究复杂量子相变上的潜力, 在未来的工作中可以通过改变石墨烯层数、堆叠序、转角等结构参量, 构建能够模拟更多强关联物理模型的石墨烯莫尔体系, 并且利用热力学量测量、光电探测、扫描电子能谱和光电子能谱等多种手段, 实现关联量子物态的多维度信息读取.

3 非常规电子型铁电

一般认为巡游电子体系不支持铁电性出现, 因为短的屏蔽长度不允许出现宏观电极化. 然而, 在原子层厚度的二维晶体中, 由于垂直方向的厚度限制, 垂直铁电极化和面内巡游电子可以共存^[29], 例如在WTe₂薄层样品体系中^[30]. 事实上, 只要体系中存在一部分局域电子, 它们在空间中非对称的分布就可以导致自发电极化. 与寻常的绝缘铁电体不同, 这种电子型铁电体系中的自发电极化并非依赖正负离子在实空间分离, 而是依赖空间不对称的电子分布. 巡游电子与自发电极化的共存允许铁电极化直接调控体系的输运特

性, 这样就无需额外材料作为沟道层, 简化了铁电场效应晶体管的结构. 因此, 探索 and 实现非常规电子型铁电的电控开关, 对于发展新型铁电存储器和存内计算器件而言非常重要.

要实现电子型铁电极化的电控开关, 需要外加电场能够非易失地调控局域电子密度与巡游电子密度的空间分布. 该机制已在BLG与hBN构筑的莫尔异质结中得到实验印证: 在这类器件中, 由于界面莫尔势的作用, 存在局域-巡游电子耦合形成的电滞回线. 研究人员发现当栅压开始增加时, 石墨烯的霍尔载流子密度反常地保持不变, 称为反常屏蔽效应^[25], 直到栅压超过一个阈值之后, 霍尔载流子密度才随着栅压增大而线性变化. 因为霍尔效应探测的是体系的巡游载流子密度, 反常屏蔽现象表明体系中具有与巡游电子共存的局域电子^[27], 在局域电子态填满后, 开始填充巡游电子. 有趣的是, 如果这时改变栅压变化的方向, 则观察到反常屏蔽效应立即重新开始. 这种对于栅压变化方向具有“记忆”的能力意味着体系的局域和巡游电子密度非易失地受到栅压调控, 产生了自发电极化. 推测在这一体系中, hBN与BLG界面的莫尔势场导致出现了层极化的局域电子态, 从而产生了空间电荷分离^[27]. 然而, 要完全理解这种非常规的电子铁电性仍然需要更多实验和理论研究. 值得注意的是, 由于电子型铁电的独特开关机制, 其铁电回滞不存在固定的矫顽场和剩余极化, 而是可以通过改变施加电场的大小实现剩余极化的连续调控. 这种外场连续可调的电子非易失性为研发新一类功能材料和神经形态计算器件提供了全新的技术路径.

在最近的一项工作中, Wang等人^[31]基于上述非常规电子型铁电异质结独特的铁电开关方式和非易失性, 实现了可调的动态脉冲响应, 进行了构建新型人工突触晶体管器件的尝试. 人工突触通过模仿生物神经网络中的信号传导和物理信息感知功能, 从而实现高稳定性、高通量的人工神经网络和类脑计算. 研究人员构筑了hBN封装的BLG莫尔铁电突触器件(图5(c)), 其中hBN与石墨烯的晶格对齐产生电场可调的莫尔势场(图5(b)). 在栅极施加电压脉冲, 可以通过改变莫尔势场的深度来调控非常规电子型铁电的极化强度, 从而改变器件的电导, 这与生物神经网络中突触可塑性具有相似性(图5(a)). 由于受到外加电场与莫尔势场的共同调控, BLG的转移特性曲线展现出栅压可控的记

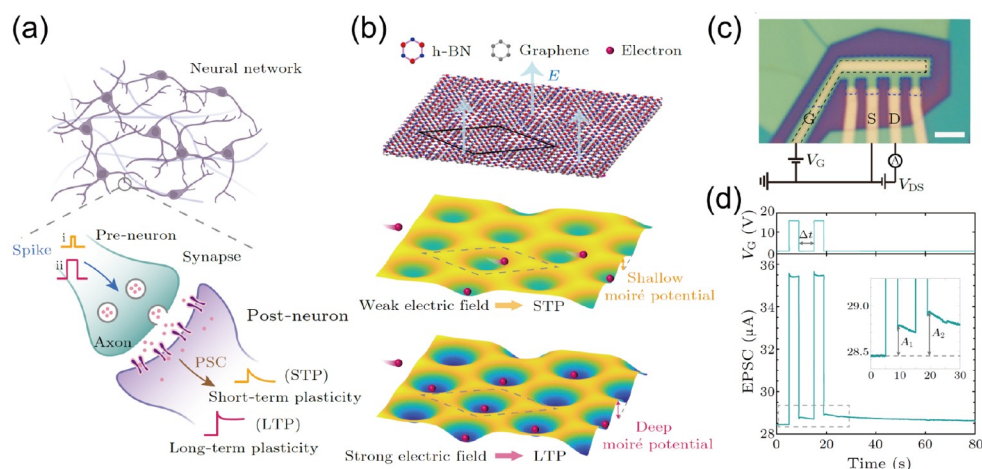


图 5 (网络版彩图)BLG/hBN莫尔铁电异质结中的可调动态响应. (a) 神经突触的结构和脉冲响应示意图. 当脉冲信号到达突触前神经元时, 会引发突触后神经元的响应. 根据响应持续时间的差别, 可以分类为短时可塑性(STP)和长时可塑性(LTP). (b) 石墨烯/hBN莫尔超晶格的晶格结构(上图)和势能景观示意图. 面外电场可以调控体系的莫尔势场和面内输运行为: 弱电场下, 莫尔势场的深度较浅, 对电子输运的影响是短时的, 导致了STP的产生(中图); 强电场下, 莫尔势场的深度足以将电子局域化, 对电子输运的影响是长时的, 导致了LTP的产生(下图). (c) 莫尔突触晶体管器件的光学照片和测试方法示意图. 标尺长度为2 μm. (d) 双脉冲易化现象, 由幅值16 V, 持续4 s, 间隔 $\Delta t = 6$ s的一对 V_G 脉冲引起的兴奋性突触后电流(EPSC). 插图为灰色虚线框的放大图. 图片引自参考文献[31], 已取得授权

Figure 5 (Color online) Tunable dynamic responses in BLG/hBN moiré ferroelectric heterostructures. (a) Schematic of neuronal synapses and their pulse response. Upon the arrival of a pulse at the presynaptic neuron, it triggers a response in the postsynaptic neuron, categorized based on response duration into short-term plasticity (STP) and long-term plasticity (LTP). (b) Schematics of the lattice structure (top) and the potential landscape of graphene/hBN moiré superlattices. Out-of-plane electric fields modulate the moiré potential landscape and in-plane transport behavior: under weak electric fields, the moiré potential is shallow, resulting in short-term effects on electron transport and STP (middle). Strong electric fields, however, deepen the moiré potential sufficiently to localize electrons, resulting in long-term effects on electron transport and LTP (bottom). (c) Optical image and schematic of a moiré synaptic transistor device. Scale bar is 2 μm. (d) Simulation of the paired-pulse facilitation phenomenon and excitatory postsynaptic currents (EPSCs) triggered by a pair of V_G pulses (amplitude 16 V, duration 4 s, interval $\Delta t = 6$ s). The inset shows the zoom-in view outlined by the gray dashed box. Copyright©2023, IOP Publishing, reprinted with permission from ref. [31].

忆窗口: 当栅压增大, 记忆窗口开始出现, 这标志着器件对外场的响应从易失性向非易失性转变. 相应地, 在较低强度的栅压脉冲刺激下, 莫尔突触晶体管表现为短时记忆的特性; 而在较高强度的栅压脉冲刺激下, 莫尔突触晶体管的电导出现了非易失的增强或抑制, 实现了从短时可塑性到长时可塑性的转变. 除了能够模拟突触可塑性, 人工突触晶体管还能对连续的多个脉冲产生动态响应, 实现双脉冲易化现象的模拟(图5(d)), 展现出对时序信息的处理能力. 人工莫尔突触器件的电导响应既具有稳定可分辨的动力学特性, 又可以实现大范围连续调控, 并且具有良好的多态保持特性, 这些优点可用于实现全莫尔物理神经网络应用.

由于局域-巡游电子的密度能够被外场精确调控, 因此非常规电子型铁电为探索铁电极化的准连续调控, 逼近铁电极化翻转的最小单元提供了新的机会. 在常规铁电单晶样品中, 当外场超过矫顽场时, 所有元胞的偶极矩总是同时翻转, 只能得到两个稳定的铁电极

化状态; 而在铁电多晶薄膜中, 往往形成多个尺度从几纳米到几百纳米的铁电畴, 铁电畴的扩张或收缩都伴随着畴壁上数以百计的元胞偶极矩的翻转. 这阻碍了在常规铁电材料中实现准连续铁电开关. 与此相反, 非常规电子型铁电体的最小极化单元对应于单个层极化电子所贡献的电偶极矩(图6). 同时, 非常规电子型铁电不存在固定的矫顽场, 而是通过静电调控局域-巡游电子密度实现连续的极化翻转, 因此更有利于实现准连续铁电开关. 实现铁电极化的准连续开关可以在单个铁电器件中获得巨大数目的非易失状态, 对研发高密度铁电存储器和存内计算器件具有重要意义. Chen等人[32]在实验上构筑了双侧对齐hBN的魔角石墨烯(DA-MATBG)样品, 并且发现石墨烯电子型铁电极化的改变与施加电压脉冲的幅值线性相关, 因此可以通过精准调整脉冲幅值实现任意铁电极化态的确定性翻转. 为了能够灵敏地读出铁电极化的变化, 我们通过构筑与铁电性共存的陈绝缘体态来实现铁电状态对

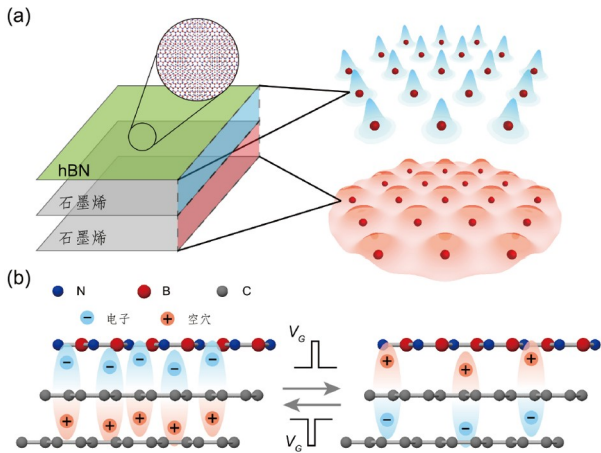


图 6 (网络版彩图)非常规电子型铁电的开关机制. (a) 电子铁电器件的结构示意图. hBN与BLG对齐, 在界面产生莫尔超晶格, 界面莫尔势能够产生局域电子态, 同时BLG中具有巡游电子. (b) 电子型铁电开关的示意图. 体系的局域电子和巡游电子分别占据莫尔界面和石墨烯层, 从而产生了面外电极化. 通过施加栅压脉冲 V_G , 可以非易失地改变体系局域电子和巡游电子的密度, 从而实现铁电极化的准连续开关

Figure 6 (Color online) Schematics of switching mechanism of unconventional electronic ferroelectricity. (a) Schematic of electronic ferroelectric devices. Aligning hBN with BLG creates a moiré superlattice at the interface, which induces localized electronic states, while BLG hosts itinerant electrons. (b) Schematic diagram of electronic ferroelectric switching. Localized and itinerant electrons occupy the moiré interface and graphene layer of the system, respectively, generating out-of-plane polarization. By applying gate voltage pulses V_G , the density of localized and itinerant electrons in the system is non-volatily altered, enabling quasi-continuous switching of ferroelectric polarization.

应的电阻值的读出. 在有限磁场下, DA-MATBG中存在陈数 $C = 4, 3, 2, 1$ 的陈绝缘体态, 其霍尔电阻对应于量子化的平台 $R_{xy} = h/Ce^2$. 当调控铁电极化使得器件的填充数处于在量子化平台之间时, 霍尔电阻随着铁电极化是连续且单调变化的, 为实现高精度的铁电极化读出提供了可靠手段. 实验中观察到1280个可区分的准连续铁电状态, 这个数字在目前的铁电存储器件中是一个纪录. 其中最近邻的铁电状态的极化密度相差 $10^{-5} \mu\text{C}/\text{cm}^2$, 比传统铁电多态存储器小了3个数量级. 这一数值对应于大约 $4 e/\mu\text{m}^2$, 其中 e 表示电子电荷量, 接近单个层极化电子贡献的铁电极化密度.

为了在铁电多态器件中实现信息的高效写入, 需要设计有效的电控方法, 实现在上千个铁电极化态之间的精准极化翻转. 然而, 铁电极化的变化范围比所需的铁电极化控制精度大了3个数量级以上, 这对于栅压脉冲的控制精度提出了很高的要求. 因此我们设

计了基于电子型铁电开关模型的反馈式控制流程: 一方面, 根据已知的实验结果建立器件铁电翻转的脉冲响应模型, 以此指导栅压脉冲的幅值大小; 另一方面, 考虑前一个脉冲引起的极化变化对后续的脉冲幅值进行修正, 以补偿模型与实际器件行为的偏差. 实验中展示了实现确定性铁电翻转的能力, 实现了在1000个准连续铁电态中随机选择的状态之间的切换. 值得注意的是, 在少数(≤ 5)脉冲下, 极化密度的准确程度就达到了铁电极化的精度要求. 这展示出电子型铁电体系出色的极化可控性, 以及确定性铁电翻转控制算法的高效性. 电子型铁电极化的选择性准连续翻转可以用于高密度铁电存储器的信息写入, 为利用铁电器件实现高性能神经形态计算应用奠定了基础.

我们在DA-MATBG器件中观测到非常规电子铁电性与拓扑陈绝缘体效应的共存, 从而实现了多个具有拓扑保护边态的陈绝缘体的任意非易失电控切换. 利用拓扑陈绝缘体效应实现突破性的技术一直是凝聚态物理和材料科学领域四十多年来的长期目标. 尽管迄今为止仍没有可行的方案, 人们普遍认为实现拓扑陈绝缘体的精准调控是其中最重要的一环. 而我们所设计的铁电陈绝缘体器件提供了一个基于拓扑保护特性实现噪声免疫神经形态计算的一个可行方案. 具体来说, 在MATBG中, 陈绝缘体效应可以通过霍尔电阻(或霍尔电导)随着载流子密度(或费米能级)的变化来表征, 如图7(a), (b)所示. 这样的霍尔电阻曲线具有三个基本特征: (1)存在许多具有最精确霍尔电阻值的量子化平台 $R_{xy} = h/Ce^2$; (2)量子化霍尔电阻值在一定程度上对外部控制参数具有容忍性; (3)相邻量子平台之间的霍尔电阻有连续单调变化区间, 方便了准连续铁电态的读出(图7(c)). 值得注意的是, 拓扑保护的量子电导平台提供了最精确的电阻值, 并且在一定参数范围内保持不变, 体现为对噪声干扰具有一定容忍性(图7(d)). 铁电陈绝缘体器件的这些优良特性使其能够实现高性能的神经形态计算应用.

利用铁电陈绝缘体器件中能够非易失开关的拓扑保护态作为信息载体, 能够实现噪声免疫的低功耗类脑计算. 这些铁电态可被用于训练卷积神经网络, 并且通过标准的量化过程将神经网络的训练权重映射到不同的拓扑陈绝缘体量子化平台上(图8). 陈绝缘体具有无耗散传输的边态, 并且其量子化电导对外部参数的变化有一定的容忍性. 因此, 神经网络的权重值不

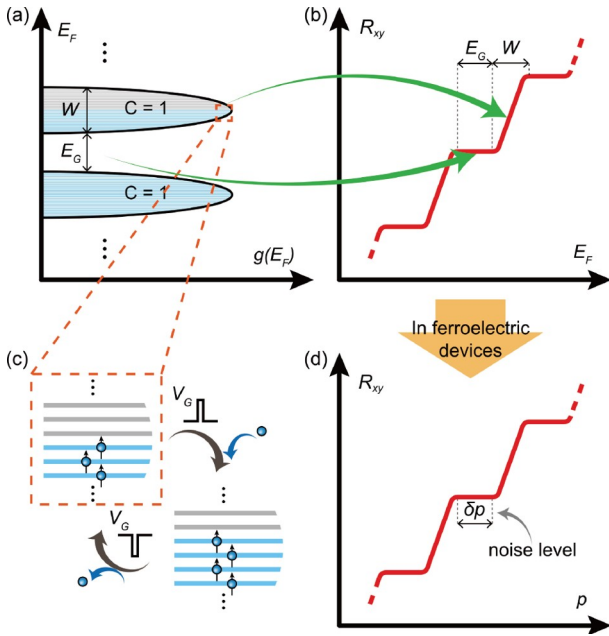


图 7 (网络版彩图)铁电陈绝缘体器件的工作机制示意图. (a) MATBG的拓扑非平庸陈带. 带宽和带隙分别表示为 W 和 E_G . 当费米面位于陈能带之间的带隙中时, 霍尔电导量子化为 Ce^2/h , 其中整数 C 表示已填充能带的陈数总和. 由于体态在陈带隙中是有间隙的, 因此量子化的霍尔电导值在一定程度上对外部控制参数具有容忍性. 另一方面, 当费米面位于陈能带内时, 霍尔电导随着费米能量的增加而连续变化. (b) MATBG中霍尔电导随费米能量的变化. (c) 通过栅压脉冲 V_G 精确调控铁电极化, 可以接近单电子极限地填充陈能带. (d) 霍尔电导随铁电极化的变化. 在特定范围的极化涨落 δp (示意了铁电材料中的噪声水平)内, 器件的霍尔电导保持不变, 因此铁电陈绝缘体可以容忍外部噪声的影响

Figure 7 (Color online) Schematics of the operating mechanism of ferroelectric Chern insulator devices. (a) Non-trivial Chern band topology of MATBG. Bandwidth and band gap denoted as W and E_G , respectively. When the Fermi level lies within the gap between Chern bands, the Hall conductivity quantizes to Ce^2/h , where integer C represents the total Chern numbers of the filled bands. Due to the gaps between Chern bands, the quantized Hall conductivity is tolerant to variations of external control parameters. Conversely, when the Fermi level resides within the Chern bands, the Hall conductivity varies continuously with Fermi energy. (b) Hall conductivity as a function of Fermi energy in MATBG. (c) Precise control of ferroelectric polarization through gate voltage pulses V_G allows near-single-electron filling of Chern bands. (d) Hall conductivity variation with ferroelectric polarization. Within a range of polarization fluctuations δp (indicating the noise level in ferroelectrics), the quantized Hall conductivity remains unchanged, thus the resistance of ferroelectric Chern insulators are noise-immune.

仅可以以非常高的精确度写入, 而且网络的推理过程是噪声免疫的. 基于这样的理念, 我们利用铁电陈绝缘体器件进行了噪声免疫的类脑计算的概念验证. 基于铁电陈绝缘体的模拟结果展示出在较大噪声水平

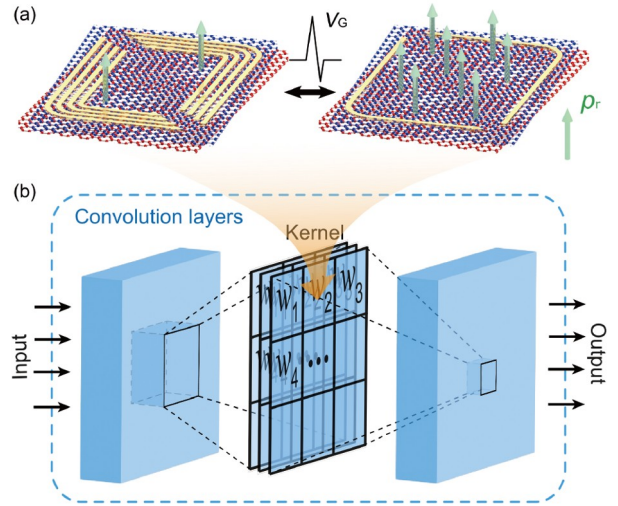


图 8 (网络版彩图)噪声免疫神经形态计算器件的设计思路. (a) 陈绝缘体的铁电非易失开关示意图. 栅压脉冲 V_G 改变剩余铁电极化 p_r 的大小, 进而实现了不同陈数的陈绝缘体之间的非易失开关. (b) 卷积神经网络的示意图. 输入数据在卷积操作后得到输出数据, 从而实现图像处理等类脑计算应用. 其中, 卷积核的权值对应于不同的铁电陈绝缘体态的霍尔电导

Figure 8 (Color online) Design concept of noise-immune neuromorphic computing devices. (a) Schematic diagram of nonvolatile switching of Chern insulator states. By applying a gate voltage pulse V_G which alters the remnant polarization p_r , we realize non-volatile switching between Chern insulator states with different Chern numbers. (b) Schematic illustration of a convolutional neural network. The input data is processed through convolution operations to yield the output data, enabling brain-inspired computing applications. Here, the weights of the convolutional kernels correspond to the Hall conductance of different ferroelectric Chern insulator states.

下, 该器件较传统的可变电阻式存储器具有更高的准确率. 结果表明, 非常规电子型铁电提供了一个崭新而强大的非易失电学调控手段, 随着非常规电子型铁电体系成员扩充, 将能够实现更多量子效应的铁电调控, 为功能多样化的新原理量子器件提供了广阔空间.

4 展望

目前研究人员愈发意识到局域-巡游电子的复杂作用在转角石墨烯体系新奇物态形成中的重要作用. 然而, 到目前为止, 对转角石墨烯体系中局域-巡游电子的竞争与耦合方面的研究和理解还远远不够. 特别地, 考虑以往的能带模型无法理解的实验现象, 比如在MATBG中扫描隧道显微镜(STM)测量得到局域电子行为与输运测量中展现的巡游电子行为, 近几年多个理论研究工作提出了MATBG中的近藤晶格模

型^[20,21]. 在该模型中, MATBG的平带结构可看作局域电子的平带(f-band)与具有拓扑性质的巡游电子的色散能带(c-band)的近藤杂化重构的结果, 而该近藤耦合作用被认为是该体系中的关联绝缘态、非常规超导、奇异金属等新奇量子物性形成的关键, 但是直接的实验证据仍然缺失. 未来在转角石墨烯体系中直接观测到近藤物理的实验证据, 特别是输运实验证据, 从而能够直接反映出局域-巡游电子的耦合作用, 是领域的研究重点之一. 值得注意的是, 相比传统的d轨道、f轨道电子主导的过渡金属化合物体系, 石墨烯莫尔异质结体系具有更丰富的原位调控手段, 可以实现对近藤晶格物理参量的连续调控. 基于此优势, 可以通过栅极电压调控实现转角石墨烯中连续的巡游电子掺杂和垂直电场调控, 再辅以磁场等手段, 研究近藤杂化作用对关联量子态的形成所具有的作用机制, 这不仅可以为理解石墨烯莫尔体系中的强关联物性提供更深入的见解, 而且有望发现全新的超越当前d和f电子系统近藤物理框架的强关联效应.

此外, 正如前面所提到的, 这种由局域电子与巡游

电子耦合作用导致的电子型铁电还有一个独特的优势, 即铁电极化可以与能带电子携带的各种新奇量子效应共存, 这使得可以通过铁电极化的翻转, 实现多种量子物态的非易失性电控开关. 除了上述介绍的陈绝缘态之外, 石墨烯莫尔异质结体系中存在的新奇量子物态还包括非常规超导、轨道磁矩、量子反常霍尔效应等, 这为开发超导二极管、约瑟夫森结、低功耗磁存储等器件提供了独特的机遇. 特别地, 石墨烯莫尔异质结中这些量子效应, 与载流子密度和电位移场强度密切相关, 同时, 我们的实验表明电子型铁电可以实现载流子密度和电位移场强度的准连续非易失调控, 因此通过铁电极化可以将材料的这些量子特性编码到铁电态中, 实现这些量子态的电控非易失开关. 最新的例子包括电控超导双稳态开关^[33], 以及拓扑能谷流的电控开关^[34]. 在未来的研究中, 需要进一步开发这些铁电量子物态的非易失、低功耗电控技术, 实现将这些量子物态作为信息载体的新原理器件, 这有望为推进基于量子材料的超低功耗、超高并行信息处理、超高集成密度的信息处理芯片提供一条可行技术途径.

参考文献

- 1 Pan X, Li Y, Cheng B, et al. 2D materials for intelligent devices. *Sci China-Phys Mech Astron*, 2023, 66: 117504
- 2 Cai W, Huang Y, Zhang X, et al. Spintronics intelligent devices. *Sci China-Phys Mech Astron*, 2023, 66: 117503
- 3 Sui X, Zhang Z, Liu K. Controllable growth of two-dimensional quantum materials. *Sci China-Phys Mech Astron*, 2023, 66: 117502
- 4 Imada M, Fujimori A, Tokura Y. Metal-insulator transitions. *Rev Mod Phys*, 1998, 70: 1039–1263
- 5 Paschen S, Si Q. Quantum phases driven by strong correlations. *Nat Rev Phys*, 2020, 3: 9–26, arXiv: 2009.03602
- 6 Checkelsky J G, Bernevig B A, Coleman P, et al. Flat bands, strange metals and the kondo effect. *Nat Rev Mater*, 2024, 9: 509–526
- 7 Li Q, Cheng B, Chen M, et al. Tunable quantum criticalities in an isospin extended Hubbard model simulator. *Nature*, 2022, 609: 479–484, arXiv: 2209.07344
- 8 Xu Y, Liu S, Rhodes D A, et al. Correlated insulating states at fractional fillings of moiré superlattices. *Nature*, 2020, 587: 214–218, arXiv: 2007.11128
- 9 Landau L D. The theory of a Fermi liquid. *Sov Phys JETP*, 1957, 3(6): 920
- 10 Gegenwart P, Si Q, Steglich F. Quantum criticality in heavy-fermion metals. *Nat Phys*, 2008, 4: 186–197, arXiv: 0712.2045
- 11 Kirchner S, Paschen S, Chen Q, et al. *Colloquium*: Heavy-electron quantum criticality and single-particle spectroscopy. *Rev Mod Phys*, 2020, 92: 011002
- 12 Stewart G R. Heavy-Fermion systems. *Rev Mod Phys*, 1984, 56: 755–787
- 13 Phillips P W, Hussey N E, Abbamonte P. Stranger than metals. *Science*, 2022, 377: 6602
- 14 Tomita T, Kuga K, Uwatoko Y, et al. Strange metal without magnetic criticality. *Science*, 2015, 349: 506–509, arXiv: 1508.02536
- 15 Kawai M, Friedman J, Sherman K, et al. Inhomogeneous Kondo-lattice in geometrically frustrated $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$. *Nat Commun*, 2021, 12: 1377, arXiv: 2006.07424
- 16 Cao Y, Fatemi V, Demir A, et al. Correlated insulator behaviour at half-filling in magic-angle graphene superlattices. *Nature*, 2018, 556: 80–84, arXiv: 1802.00553

- 17 Cao Y, Fatemi V, Fang S, et al. Unconventional superconductivity in magic-angle graphene superlattices. *Nature*, 2018, 556: 43–50, arXiv: [1803.02342](#)
- 18 Cao Y, Rodan-Legrain D, Rubies-Bigorda O, et al. Tunable correlated states and spin-polarized phases in twisted bilayer-bilayer graphene. *Nature*, 2020, 583: 215–220
- 19 Liu X, Hao Z, Khalaf E, et al. Tunable spin-polarized correlated states in twisted double bilayer graphene. *Nature*, 2020, 583: 221–225
- 20 Chou Y Z, Das Sarma S. Kondo lattice model in magic-angle twisted bilayer graphene. *Phys Rev Lett*, 2023, 131: 026501, arXiv: [2211.15682](#)
- 21 Song Z D, Bernevig B A. Magic-angle twisted bilayer graphene as a topological heavy fermion problem. *Phys Rev Lett*, 2022, 129: 047601, arXiv: [2111.05865](#)
- 22 Vaño V, Amini M, Ganguli S C, et al. Artificial heavy fermions in a van der Waals heterostructure. *Nature*, 2021, 599: 582–586
- 23 Zhao W, Shen B, Tao Z, et al. Gate-tunable heavy fermions in a moiré Kondo lattice. *Nature*, 2023, 616: 61–65, arXiv: [2211.00263](#)
- 24 Ruan W, Zhang Y. Strong correlations in two-dimensional transition metal dichalcogenides. *Sci China-Phys Mech Astron*, 2023, 66: 117506
- 25 Zheng Z, Ma Q, Bi Z, et al. Unconventional ferroelectricity in moiré heterostructures. *Nature*, 2020, 588: 71–76
- 26 Yan X, Zheng Z, Sangwan V K, et al. Moiré synaptic transistor with room-temperature neuromorphic functionality. *Nature*, 2023, 624: 551–556
- 27 Zheng Z, Wang X, Zhu Z, et al. Electronic ratchet effect in a moiré system: Signatures of excitonic ferroelectricity. arXiv: [230603922](#).
- 28 Deshmukh M M. Simple solids can mimic complex electronic states. *Nature*, 2022, 609: 470–471
- 29 Tan Y, Zheng J, Niu X, et al. Research progress on 2D ferroelectric and ferrovalley materials and their neuromorphic application. *Sci China-Phys Mech Astron*, 2023, 66: 117505
- 30 Fei Z, Zhao W, Palomaki T A, et al. Ferroelectric switching of a two-dimensional metal. *Nature*, 2018, 560: 336–339
- 31 Wang P, Chen M, Xie Y, et al. Moiré synaptic transistor for homogeneous-architecture reservoir computing. *Chin Phys Lett*, 2023, 40: 117201, arXiv: [2310.11743](#)
- 32 Chen M, Xie Y, Cheng B, et al. Selective and quasi-continuous switching of ferroelectric Chern insulator devices for neuromorphic computing. *Nat Nanotechnol*, 2024, 19: 962–969, arXiv: [2407.17010](#)
- 33 Klein D R, Xia L Q, MacNeill D, et al. Electrical switching of a bistable moiré superconductor. *Nat Nanotechnol*, 2023, 18: 331–335, arXiv: [2205.04458](#)
- 34 Niu R, Li Z, Han X, et al. Giant ferroelectric polarization in a bilayer graphene heterostructure. *Nat Commun*, 2022, 13: 6241

Competition and coupling effect between localized and itinerant electrons in graphene moiré heterostructures

CHEN Moyu¹, XIE Yongqin¹, CHENG Bin^{2*}, LIANG Shijun^{1*} & MIAO Feng^{1*}

¹ Institute of Brain-Inspired Intelligence, Nanjing University, Nanjing 210093, China;

² School of Physics, Nanjing University of Science and Technology, Nanjing 210094, China

*Corresponding authors (CHENG Bin, email: bincheng@njust.edu.cn; LIANG Shijun, email: sjliang@nju.edu.cn; MIAO Feng, email: miao@nju.edu.cn)

Van der Waals heterostructures constructed from two-dimensional quantum materials exhibit rich emergent interfacial quantum states and excellent tunability of those physical properties. These materials not only provide a robust platform for exploring novel quantum states and their evolution but also offer a diverse material library for developing new principles in electronic device functionalities. This article introduces the electric transport studies in graphene-based moiré heterostructures performed by us in the past few years, extensively discussing the competition and coupling effects between itinerant and localized electrons. These effects influence the formation and evolution of new quantum states and offer new perspectives for designing advanced electronic devices. We achieved high-precision observations of the quantum melting process in electron crystals by *in-situ* tuning the coupling strength between itinerant and localized electrons. We observed novel quantum critical behaviors, including quantum two-stage criticality and quantum pseudo criticality, for the first time. These findings underscore the substantial potential of graphene moiré heterostructures in solid-state quantum simulations, especially for investigating the evolution of quantum critical behaviors. Furthermore, the coupling between layer-resolved itinerant and localized electrons can induce unconventional electronic-type ferroelectricity. The polarization intensity of this ferroelectricity exhibits quasi-continuous and precise control over multiple states that are crucial for high-precision neuromorphic computing. Notably, electronic-type ferroelectricity allows the coexistence of ferroelectricity and other quantum states such as Chern insulators, offering a unique platform for designing noise-immune neuromorphic computing and other new physical computing hardware.

two-dimensional materials, electron transport, quantum state manipulation, physical computing

PACS: 71.27.+a, 73.22.Pr, 73.21.Cd, 85.35.-p, 73.23.-b

doi: [10.1360/SSPMA-2024-0321](https://doi.org/10.1360/SSPMA-2024-0321)