PhD Tézisfüzet

Grafén-alapú heteroszerkezetek vizsgálata nyomás alatt

Bálint SZENTPÉTERI



Fizika Tanszék

Budapesti Műszaki és Gazdaságtudományi Egyetem2025

Témavezető:

Péter MAKK Egyetemi docens Fizika Tanszék BME

1. Bevezetés

A technológia fejlődésének ütemének fenntartásához folyamatosan új, a kívánt tulajdonságokkal bíró anyagra van szükség. Kapuelektródákkal körülölelt térvezérlésű tranzisztorokkal a félvezetőipar néhány éven belül el fogja érni a szilíciumtechnológia elméleti minimumát, a 0.5 nm-es csíkszélességet[1]. Hogy túllépjünk ezen, alapvető változtatásra van szükség, hogy az anyagot atomi pontossággal tudjuk tervezni a következő generációs mikroelektronikai eszközökben[2]. Ehhez egy alternatív út nyílt meg előttünk a kétdimenziós (2D) anyagok felfedezésével[3], mely a grafén izolálásával kezdődött[4]. A 2D anyagok között találhatunk a grafénen kívül, ami egy félfém, szigetelőket, mint a hBN, félvezetőket, mint az átmenetifém-dikalkogenidek (TMDs), topologikus szigetelőket, stb[5, 6].

Az, hogy a 2D kristályokat egymásra lehet pakolni rétegenként atomi pontossággal és van der Waals (vdW) heteroszerkezeteket létrehozva ezáltal, egyedivé teszi a őket a hagyományos anyagokhoz képest[5, 7]. Ezeknek a heteroszerkezeteknek a tulajdonságait az őket alkotó anyagok valamint a rétegek közötti kölcsönhatás határozza meg[8, 9]. Például hBN kristályt lehet arra használni, hogy megvédje a grafént a külvilágtól úgy, hogy két hBN kristály közé tesszük a grafént, mely által a töltéshordozók mobilitását is megnöveljük benne[10, 11]. Egy hBN/grafén heteroszerkezetben az eltérő rácsállandó moiré-mintázathoz vezethet, ami függ a kristályok relatív orientációjától, a csavarszögtől. Ennek eredményeként szuperrács alakul ki, amiben a moiré-mintázat egy periodikus potenciálként viselkedik[12].

Szemben a hagyományos heteroszerkezetekkel, vdW heteroszerkezetekben az őket alkotó kristályok kristálytani orientációi között bezárt szögnek, a csavarási szögnek fontos szerepe van a vdW heteroszerkezetek tulajdonságaiban. A csavarás alapjaiban változtathatja meg az anyag tulajdonságait, mely által új tulajdonságok és fázisok jelenhetnek meg az anyagban. Például egy csavart kétrétegű grafénban korrelált szigetelő fázisok és szupravezetés is megfigyelhető[13, 14]. A csavartronika területe, ami a csavarás hatásait vizsgálja, dinamikusan növekszik, újabb és újabb rendszereket vizsgálnak, mint például csavart TMD kristályokból álló heteroszerkezeteket[15].

A csavartronikán kívül a vdW anyagok a spintronikában is érdekesek lehetnek. A spintronika a töltéshordozók spin szabadsági fokát használja ki, olyan elektronikus eszközöket megvalósítva, melyeknek működésének alapja a töltéshordozó spinjének manipulálása a töltése helyett[16]. Ez a spinmanipulálás általában mágneses térrel vagy elektromos térrel a spin – pálya csatolás (SOC) segítségével történik. A legtöbb spintronikai eszköz spinszelep geometriára épül, ami két mágneses rétegből és egy köztük lévő nem mágneses rétegből felépülő rétegszerkezet. Például egy szigetelő réteg van két ferromágneses réteg között egy alagút mágneses ellenállásban, amelyet memóriaelemként lehet merevlemezekben felhasználni. Továbbá, spin – pálya nyomaték elvén működő memória (SOT-MRAM) modulokban két ferromágneses réteg között egy nem mágneses anyag van. Ilyen eszközökben a memória állapotának változtatására spinpolarizált áramot használunk[17]. Ezekhez hasonló rétegszerkezeteket 2D anyagokból is meg lehet valósítani, ahol például a grafén szolgál általában a vezető csatornaként olyan kiváló tulajdonságainak köszönhetően, mint például, hogy a SOC elhanyagolható benne, valamint nincs magspinje a ¹²C atomoknak[18, 19]. Azonban ha a grafént TMD kristályokkal kombináljuk, akkor azok a grafénben spin – pálya csatolást indukálnak közeltéri (*proximity*) effektus segítségével[20], valamint ezekben a heteroszerkezetekben a spináram elektromos kapuelektródák[21–24], illetve spin-töltés konverzió[25–28] segítségével hangolható, közelebb hozva ez által az ipari felhasználását a 2D anyagoknak.

Mivel a rétegek közötti kölcsönhatások rendkívül fontos szerepet játszanak a vdW heteroszerkezetekben, így a kölcsönhatásoknak az erősségének hangolásával ezen szerkezetek tulajdonságai nagy mértékben módosulnak[9]. A rétegtávolság változtatása jelentős mértékben hangolja a rétegek között kölcsönhatás erősségét, melyet a gyakorlatban a minta megnyomásával tudunk megvalósítani[29]. A nyomás hatására új fázisok alakulhatnak ki, melyek az anyag új másfajta felhasználásához vezethetnek, így ezek tanulmányozása nagyon fontos az alapkutatásban. A tézisem célja, hogy a nyomás vdW heteroszerkezetekre kifejtett hatását vizsgáljam elektromos transzportmérési technikákkal.

A tézisemet megelőzően a BME Nanoelektronikai Laboratóriumában végzett kísérleti kutatási tevékenység az egyrétegű grafén (SLG) transzport tulajdonságaira összpontosított Si/SiO₂ hordozón vagy felfüggesztve vákuumban[30–34]. Ezt követően SLG alapú heterostruktúrákon és egyéb anyagokon vizsgálták a nyomás hatását[35, 36].

2. Célkitűzések

A nyomásnak a vdW heteroszerkezetek transzport tulajdonságaira gyakorolt hatásának vizsgálata viszonylag új terület[35, 37–39]. Fő célom ennek a területnek a kiterjesztése, hidrosztatikus nyomásfüggő mérések elvégzésével új vdW heteroszerkezeteken.

Új fizika megfigyeléséhez grafénben, például elektronoptika[40], Moiré fizika[41], tört kvantum Hall–effektus[42] vagy nagyon viszkózus elektronfolyadékok[43, 44] és a grafén ipari felhasználásához elengedhetetlen megbízhatóan jó minőségű, reprodukálható mintákat készíteni. Ennek eléréséhez elengedhetetlen a rendezetlenség (*disorder*) fő forrásának és a töltéshordozók mobilitást korlátozó tényezőknek az ismerete, hogy ezeket a mintakészítés során ki lehessen küszöbölni. A grafén hBN kristályok közé helyezésével nagy mobilitású eszközöket valósíthatunk meg[10, 45, 46]. Ezekben a heteroszerkezetekben alacsony hőmérsékleten a fő forrása a rendezetlenségnek a hosszú hatótávú szórások, magasabb hőmérsékleten pedig az elektron-fonon csatolás kezd dominálni. Ennek a tézisnek az egyik célja az volt, hogy ezeket a heteroszerkezeteket nyomás alatt tanulmányozzam, hogy megpróbáljam kideríteni a rendezetlenség eredetét.

A grafén ideális anyag a spintronikai felhasználáshoz a kiváló tulajdonságainak köszönhetően, mint például az alacsony benne a spin – pálya csatolás (SOC) és a hiperfinom csatolás[19, 47]. A grafén spintronikai eszközökben való használatához azonban a spininformáció elektromos vezérlése szükséges[20, 48], amelyhez nagy SOC szükséges. Az elmélet szerint a SOC növelhető, ha a grafént egy átmenetifém-dikalkogenid (TMD) közelébe hozzuk, amelyben nagy a SOC[20]. Ezt később kísérletekkel bizonyították[21– 23, 27, 28, 49–62]. Célom volt, hogy megvizsgáljam, hogy a nyomás tovább növelheti-e az indukált SOC-t, vagy milyen egyéb módon befolyásolja a rendszert. Feladataim kísérleti és elméleti munkákat foglaltak magukban.

A csavart szerkezetek közül a csavart dupla kétrétegű grafén (TDBG) nagyon érdekes, mivel elektromos térrel is hangolható, valamint korrelált szigetelő és topológiailag nem triviális fázisokkal bír[63–71]. A csavart struktúrákban a rétegközi kölcsönhatások döntő szerepet játszanak, amelyek nyomással hangolhatók. Célom ennek igazolása volt valamint a nyomás sávszerkezetre gyakorolt hatásának kísérleti és elméleti vizsgálata volt.

3. Új tudományos eredmények

Dolgozatom eredményeit a következő tézispontokban foglalom össze:

- 1. Először mutattam meg a csavart dupla kétrétegű grafén moiré tiltott sávjainak széleskörű hangolhatóságát nyomással az elmélettel összhangban. Hőmérséklet és feszültségfüggő transzport méréseket végeztem. A termikus aktivációs és a feszültségfüggő mérésekből meghatároztam egy TDBG moiré tiltott sávjait a mágikus szög közelében, és megmutattam, hogy a TDBG tiltott sávjait hidrosztatikus nyomás alkalmazásával csökkenteni és teljesen be is lehet zárni. Továbbá Brown-Zak oszcilláció mérésével kimutattam, hogy a csavarszög nyomás hatására nem változik. Végül a nyomás növelésével a korrelációs hatások csökkenését is megfigyeltem. [T1]
- 2. Elsőként mutattam be WSe_2/BLG heteroszerkezetekben az indukált Rashba-típusú és Ising-típusú SOC hidrosztatikus nyomással történő

növelését az elmélettel összhangban. Alacsony hőmérsékletű mágneses tér függő kísérleteket végeztem WSe₂/BLG heteroszerkezeteken. A kísérletekben a Shubnikov-de Haas oszcillációkat használtam a Rashba-típusú SOC erősség meghatározásához, valamint kvantum Hall effektus segítségével az Ising-típusú SOC erősségét a Landau-szint kereszteződések pozícióinak mérésével határoztam meg. Megmutattam, hogy nyomás hatására a kereszteződési pontok helyzete megváltozik WSe₂/BLG heteroszerkezetekben, és azt is kimutattam, hogy a nyomás növeli a Fermi-felületek felhasadását, ami a SOC miatt van felhasadva. Ezek alapján azt tapasztaltam, hogy az indukált spin – pálya csatolás erőssége több mint 50%-kal nőtt nyomás hatására egyoldalról WSe₂ kristállyal határolt kétrétegű grafénben. [T2]

3. A moiré gapek csökkenését és bezáródását csavart dupla kétrétegű grafénben szimulációk segítségével demonstráltam nyomás hatására, ami jó egyezést mutatott a kísérletekkel [T1]. A WSe₂/BLG heterostruktúrák Fermi-felületeinek változását a Rashba-típusú SOC változtatásával szimuláltam, a Landau-szintek keresztezéseinek változását pedig az Ising-típusú SOC változtatásával számoltam ki [T2]. A szimulációk segítségével meghatároztam a SOC erősségét a modellek mérési adatokra való illesztésével [T2, T3]. Sikeresen alkalmaztam a Bistritzer-MacDonald modellt csavart dupla kétrétegű grafénre, mely során a rétegközi átugrási (hopping) integrál nyomásfüggését a szakirodalomból vettem a sávszerkezet kiszámításához különböző nyomásokon [T1]. Megállapítottam, hogy a nyomás növelésével a moiré gapek csökkennek és teljesen be is záródnak, ami jó egyezést mutatott a kísérleteimmel [T1]. A WSe₂/BLG heteroszerkezetek esetében a sávszerkezetet alacsony energiás közelítéssel számoltam [T2]. A sávszerkezetből kiszámítottam a Fermifelületeket különböző Rashba-típusú csatolási erősségek mellett. Ezután a kísérletileg meghatározott Fermi-felületek nagyságára illesztettem a modellt, amiből megkaptam a Rashba-típusú SOC erősségét [T2]. A heteroszerkezet kisenergiájú modelljéből numerikusan kiszámítottam a Landau-szintek energiáit külső elektromos tér függvényében. A Landau-szintek keresztezéseinek helyzetének változását az Ising-típusú SOC erősségének változtatásával számoltam ki. A modellt a kísérletileg meghatározott keresztezési pozíciókra illesztettem, amiből meghatároztam az Ising-típusú SOC erősségét [T2]. Továbbá modelleztem egy WSe₂/BLG/WSe₂ heteroszerkezetet is, ahol az Ising-típusú SOC a két grafén rétegen ellentétes előjelű volt [T3]. Megállapítottam, hogy az elektromos tér növelésével a SOC által kiváltott gap bezárul majd egy új tiltott sáv nyílik, ahol az a pont, ahol bezáródik felhasználható az Ising-típusú SOC erősség meghatározásásra [T3].

4. Megmutattam, hogy a nagy mobilitású egyrétegű grafénben a töltéshordozók mobilitása csökken a nyomás hatására a megnövekedett rövid és nagy hatótávolságú szórási folyamatok, valamint a határfelületi fononok csatolásának hidrosztatikus nyomással való változtatása miatt. Kapufüggő vezetőképesség és a Shubnikov-de Haas oszcillációs mérésekből kimutattam, hogy a nagy mobilitású grafén eszközökben a nagy hatótávolságú szórás az ellenállás fő forrása és nyomás alatt is domináns marad. Gyenge-lokalizációs mérések segítségével megállapítottam, hogy a nagy elektronmobilitású eszközökben a kis hatótávolságú szóródást elsősorban a minta szélei okozzák és ez független a nyomástól. Síkbeli mágneses tér függő gyenge-lokalizációs mérésekkel kimutattam, hogy a fodrozódás (ripples) térfogata a nyomás növelésével nőtt. Kapufüggő vezetőképesség mérésekből kimutattam a rövid és nagy hatótávolságú szórás nyomás növekedését nyomás hatására. Hőmérsékletfüggő mágneses fókuszálási kísérletekből megállapítottam, hogy a nyomás elhanyagolható mértékben befolyásolja az elektron-elektron kölcsönhatás és az akusztikus fonon-elektron csatolás együttes hatását. Hőmérsékletfüggő transzport mérésekből kimutattam, hogy a határfelületi fonon-elektron csatolás a nyomással növekszik. [T4]

A tézispontokhoz kapcsolódó tudományos közlemények

- T1 Bálint Szentpéteri, Peter Rickhaus, Folkert K. de Vries, Albin Márffy, Bálint Fülöp, Endre Tóvári, Kenji Watanabe, Takashi Taniguchi, Andor Kormányos, Szabolcs Csonka and Péter Makk, Tailoring the band structure of twisted double bilayer graphene with pressure. Nano Letters 21(20), 8777–8784 (2021)
- T2 Bálint Szentpéteri, Albin Márffy, Máté Kedves, Endre Tóvári, Bálint Fülöp, István Kükemezey, András Magyarkuti, Kenji Watanabe, Takashi Taniguchi, Szabolcs Csonka and Péter Makk, Increasing the proximity-induced spin-orbit coupling in bilayer graphene/WSe₂ heterostructures with pressure. Accepted in Physical Review B, arXiv:2409.20062
- T3 Máté Kedves, Bálint Szentpéteri, Albin Márffy, Endre Tóvári, Nikos Papadopoulos, Prasanna K. Rout, Kenji Watanabe, Takashi Taniguchi, Srijit Goswami, Szabolcs Csonka and Péter Makk, Stabilizing the Inverted Phase of a WSe₂/BLG/WSe₂ Heterostructure via Hydrostatic Pressure. *Nano Letters* 23(20), 9508–9514 (2023)

T4 Bálint Szentpéteri *et al.* Origin of the reduced charge carrier mobility in graphene under pressure. Manuscript in preparation.

További tudományos közlemények

- T5 Zoltán Kovács-Krausz, Anamul Md Hoque, Péter Makk, Bálint Szentpéteri, Mátyás Kocsis, Bálint Fülöp, Michael Vasilievich Yakushev, Tatyana Vladimirovna Kuznetsova, Oleg Evgenevich Tereshchenko, Konstantin Aleksandrovich Kokh, István Endre Lukács, Takashi Taniguchi, Kenji Watanabe, Saroj Prasad Dash, and Szabolcs Csonka, Electrically Controlled Spin Injection from Giant Rashba Spin–Orbit Conductor BiTeBr. Nano Letters 20(7), 4782–4791 (2020)
- T6 Bálint Fülöp, Albin Márffy, Simon Zihlmann, Martin Gmitra, Endre Tóvári, Bálint Szentpéteri, Máté Kedves, Kenji Watanabe, Takashi Taniguchi, Jaroslav Fabian, Christian Schönenberger, Péter Makk, and Szabolcs Csonka, Boosting proximity spin-orbit coupling in graphene/WSe₂ heterostructures via hydrostatic pressure. npj 2D Materials and Applications 5, 82 (2021)

Hivatkozások

- Valasa, S., Kotha, V. R. & Vadthiya, N. Beyond moore's law a critical review of advancements in negative capacitance field effect transistors: A revolution in next-generation electronics. *Materials Science in Semiconductor Processing* 173, 108116 (2024).
- [2] Yoo, J., Nam, C.-Y. & Bussmann, E. Atomic precision processing of twodimensional materials for next-generation microelectronics. ACS Nano 18, 21614– 21622 (2024).
- [3] Novoselov, K. S. et al. Two-dimensional atomic crystals. Proceedings of the National Academy of Sciences 102, 10451–10453 (2005).
- [4] Novoselov, K. S. *et al.* Electric field effect in atomically thin carbon films. *Science* 306, 666–669 (2004).
- [5] Geim, A. K. & Grigorieva, I. V. Van der waals heterostructures. Nature 499, 419–425 (2013).
- [6] Qian, X., Liu, J., Fu, L. & Li, J. Quantum spin hall effect in two-dimensional transition metal dichalcogenides. *Science* 346, 1344–1347 (2014).

- [7] Ajayan, P., Kim, P. & Banerjee, K. Two-dimensional van der waals materials. *Physics Today* 69, 38–44 (2016).
- [8] Ferrari, A. C. et al. Science and technology roadmap for graphene, related twodimensional crystals, and hybrid systems. Nanoscale 7, 4598–4810 (2015).
- [9] Bian, Z., Miao, J., Zhao, Y. & Chai, Y. Strong interlayer interaction for engineering two-dimensional materials. Accounts of Materials Research 3, 1220–1231 (2022).
- [10] Dean, C. R. et al. Boron nitride substrates for high-quality graphene electronics. Nature Nanotechnology 5, 722–726 (2010).
- [11] Yankowitz, M., Ma, Q., Jarillo-Herrero, P. & LeRoy, B. J. van der waals heterostructures combining graphene and hexagonal boron nitride. *Nature Reviews Physics* 1, 112–125 (2019).
- [12] Hennighausen, Z. & Kar, S. Twistronics: a turning point in 2d quantum materials. Electronic Structure 3, 014004 (2021).
- [13] Cao, Y. et al. Correlated insulator behaviour at half-filling in magic-angle graphene superlattices. Nature 556, 80–84 (2018).
- [14] Cao, Y. et al. Unconventional superconductivity in magic-angle graphene superlattices. Nature 556, 43–50 (2018).
- [15] Shah, S. J. et al. Progress and prospects of moiré superlattices in twisted tmd heterostructures. Nano Research 17, 10134–10161 (2024).
- [16] Fabian, J., Matos-Abiague, A., Ertler, C., Stano, P. & Zutic, I. Semiconductor spintronics. Acta Physica Slovaca 57, 565–907 (2007).
- [17] Ralph, D. & Stiles, M. Spin transfer torques. Journal of Magnetism and Magnetic Materials 320, 1190–1216 (2008).
- [18] Seneor, P. et al. Spintronics with graphene. MRS Bulletin 37, 1245–1254 (2012).
- [19] Han, W., Kawakami, R. K., Gmitra, M. & Fabian, J. Graphene spintronics. Nature Nanotechnology 9, 794–807 (2014).
- [20] Gmitra, M. & Fabian, J. Graphene on transition-metal dichalcogenides: A platform for proximity spin-orbit physics and optospintronics. *Physical Review B* 92, 155403 (2015).
- [21] Yan, W. et al. A two-dimensional spin field-effect switch. Nature Communications 7, 13372 (2016).

- [22] Yang, B. et al. Tunable spin-orbit coupling and symmetry-protected edge states in graphene/WS2. 2D Materials 3, 031012 (2016).
- [23] Dankert, A. & Dash, S. P. Electrical gate control of spin current in van der waals heterostructures at room temperature. *Nature Communications* 8, 16093 (2017).
- [24] Omar, S. & van Wees, B. J. Spin transport in high-mobility graphene on WS2 substrate with electric-field tunable proximity spin-orbit interaction. *Physical Re*view B 97, 045414 (2018).
- [25] Benitez, L. A. *et al.* Tunable room-temperature spin galvanic and spin hall effects in van der waals heterostructures. *Nature Materials* 19, 170–175 (2020).
- [26] Herling, F. et al. Gate tunability of highly efficient spin-to-charge conversion by spin hall effect in graphene proximitized with wse2. APL Materials 8, 071103 (2020).
- [27] Safeer, C. K. et al. Room-temperature spin hall effect in graphene/MoS2 van der waals heterostructures. Nano Letters 19, 1074–1082 (2019).
- [28] Yang, H. et al. Twist-angle-tunable spin texture in wse2/graphene van der waals heterostructures. Nature Materials (2024).
- [29] Pimenta Martins, L. G. et al. High-pressure studies of atomically thin van der waals materials. Applied Physics Reviews 10 (2023).
- [30] Maurand, R. et al. Fabrication of ballistic suspended graphene with local-gating. Carbon 79, 486–492 (2014).
- [31] Tóvári, E., Csontos, M., Kriváchy, T., Fürjes, P. & Csonka, S. Characterization of sio2/sinx gate insulators for graphene based nanoelectromechanical systems. *Applied Physics Letters* **105** (2014).
- [32] Rickhaus, P. et al. Snake trajectories in ultraclean graphene p-n junctions. Nature Communications 6 (2015).
- [33] Tóvári, E. *et al.* Gate-controlled conductance enhancement from quantum hall channels along graphene p–n junctions. *Nanoscale* **8**, 19910–19916 (2016).
- [34] Tóvári, E., Makk, P., Rickhaus, P., Schönenberger, C. & Csonka, S. Signatures of single quantum dots in graphene nanoribbons within the quantum hall regime. *Nanoscale* 8, 11480–11486 (2016).

- [35] Fülöp, B. *et al.* New method of transport measurements on van der waals heterostructures under pressure. *Journal of Applied Physics* **130**, 064303 (2021).
- [36] Kovács-Krausz, Z. et al. Signature of pressure-induced topological phase transition in zrte5. npj Quantum Materials 9 (2024).
- [37] Yankowitz, M. et al. Dynamic band-structure tuning of graphene moiré superlattices with pressure. Nature 557, 404–408 (2018).
- [38] Yankowitz, M. et al. Tuning superconductivity in twisted bilayer graphene. Science 363, 1059–1064 (2019).
- [39] Song, T. et al. Switching 2d magnetic states via pressure tuning of layer stacking. Nature Materials 18, 1298–1302 (2019).
- [40] Chakraborti, H. et al. Electron wave and quantum optics in graphene. Journal of Physics: Condensed Matter 36, 393001 (2024).
- [41] Andrei, E. Y. & MacDonald, A. H. Graphene bilayers with a twist. Nature Materials 19, 1265–1275 (2020).
- [42] Bolotin, K. I., Ghahari, F., Shulman, M. D., Stormer, H. L. & Kim, P. Observation of the fractional quantum hall effect in graphene. *Nature* 462, 196–199 (2009).
- [43] Crossno, J. et al. Observation of the dirac fluid and the breakdown of the wiedemann-franz law in graphene. Science 351, 1058–1061 (2016).
- [44] Bandurin, D. A. *et al.* Negative local resistance caused by viscous electron backflow in graphene. *Science* **351**, 1055–1058 (2016).
- [45] Wang, L. et al. Negligible environmental sensitivity of graphene in a hexagonal boron nitride/graphene/h-bn sandwich structure. ACS Nano 6, 9314–9319 (2012).
- [46] Wang, L. et al. One-dimensional electrical contact to a two-dimensional material. Science 342, 614–617 (2013).
- [47] Roche, S. et al. Graphene spintronics: the european flagship perspective. 2D Materials 2, 030202 (2015).
- [48] Gmitra, M. & Fabian, J. Proximity effects in bilayer graphene on monolayer WSe2
 : Field-effect spin valley locking, spin-orbit valve, and spin transistor. *Physical Review Letters* 119, 146401 (2017).
- [49] Wang, Z. et al. Strong interface-induced spin-orbit interaction in graphene on WS2. Nature Communications 6, 8339 (2015).

- [50] Wang, Z. et al. Origin and magnitude of designer' spin-orbit interaction in graphene on semiconducting transition metal dichalcogenides. Physical Review X 6, 041020 (2016).
- [51] Yang, B. et al. Strong electron-hole symmetric rashba spin-orbit coupling in graphene/monolayer transition metal dichalcogenide heterostructures. *Physical Review* B 96, 041409 (2017).
- [52] Wakamura, T. et al. Strong anisotropic spin-orbit interaction induced in graphene by monolayer ws2. Physical Review Letters 120, 106802 (2018).
- [53] Zihlmann, S. et al. Large spin relaxation anisotropy and valley-zeeman spin-orbit coupling in wse2/graphene/h-bn heterostructures. Physical Review B 97, 075434 (2018).
- [54] Amann, J. et al. Counterintuitive gate dependence of weak antilocalization in bilayer graphene/wse2 heterostructures. Physical Review B 105, 115425 (2022).
- [55] Afzal, A. M. et al. Gate modulation of the spin-orbit interaction in bilayer graphene encapsulated by ws2 films. Scientific Reports 8, 3412 (2018).
- [56] Tiwari, P. et al. Experimental observation of spin-split energy dispersion in highmobility single-layer graphene/wse2 heterostructures. npj 2D Materials and Applications 6, 68 (2022).
- [57] Rao, Q. et al. Ballistic transport spectroscopy of spin-orbit-coupled bands in monolayer graphene on wse2. Nature Communications 14, 6124 (2023).
- [58] Omar, S. & van Wees, B. J. Graphene-ws2 heterostructures for tunable spin injection and spin transport. *Physical Review B* 95, 081404 (2017).
- [59] Avsar, A. et al. Spin-orbit proximity effect in graphene. Nature Communications 5, 4875 (2014).
- [60] Benítez, L. A. et al. Strongly anisotropic spin relaxation in graphene-transition metal dichalcogenide heterostructures at room temperature. Nature Physics 14, 303–308 (2017).
- [61] Ghiasi, T. S., Ingla-Aynés, J., Kaverzin, A. A. & van Wees, B. J. Large proximityinduced spin lifetime anisotropy in transition-metal dichalcogenide/graphene heterostructures. *Nano Letters* 17, 7528–7532 (2017).
- [62] Sun, L. et al. Determining spin-orbit coupling in graphene by quasiparticle interference imaging. Nature Communications 14, 3771 (2023).

- [63] Burg, G. W. et al. Correlated insulating states in twisted double bilayer graphene. Physical Review Letters 123, 197702 (2019).
- [64] Cao, Y. et al. Tunable correlated states and spin-polarized phases in twisted bilayer-bilayer graphene. Nature 583, 215–220 (2020).
- [65] He, M. et al. Symmetry breaking in twisted double bilayer graphene. Nature Physics 17, 26–30 (2020).
- [66] Rickhaus, P. et al. Correlated electron-hole state in twisted double-bilayer graphene. Science 373, 1257–1260 (2021).
- [67] Wang, Y. et al. Emergent symmetry and valley chern insulator in twisted doublebilayer graphene. Physical Review Letters 133, 246401 (2024).
- [68] Liu, X. et al. Tunable spin-polarized correlated states in twisted double bilayer graphene. Nature 583, 221–225 (2020).
- [69] Shen, C. et al. Correlated states in twisted double bilayer graphene. Nature Physics 16, 520–525 (2020).
- [70] Liu, L. et al. Isospin competitions and valley polarized correlated insulators in twisted double bilayer graphene. Nature Communications 13 (2022).
- [71] Kuiri, M. et al. Spontaneous time-reversal symmetry breaking in twisted double bilayer graphene. Nature Communications 13 (2022).