

专题：拓扑物理前沿与应用

## 拓扑半金属材料角分辨光电子能谱研究进展\*

邓韬<sup>1)2)3)</sup> 杨海峰<sup>3)</sup> 张敬<sup>3)</sup> 李一苇<sup>4)</sup>  
杨乐仙<sup>5)</sup> 柳仲楷<sup>3)†</sup> 陈宇林<sup>3)4)5)‡</sup>1) (中国科学院上海微系统与信息技术研究所, 中国科学院超导电子学卓越创新中心,  
信息功能材料国家重点实验室, 上海 200050)

2) (中国科学院大学, 北京 100049)

3) (上海科技大学物质科学与技术学院, 上海 201210)

4) (牛津大学物理系, 牛津郡 OX1 3PU)

5) (清华大学物理系, 北京 100084)

(2019年10月10日收到; 2019年11月11日收到修改稿)

拓扑半金属材料是具有拓扑保护的能带交叠的一类无能隙拓扑量子材料, 具备许多独特的物理性质, 是目前量子材料研究的前沿领域. 根据能带交叠的简并度和维度等不同信息, 拓扑半金属材料可以分为拓扑狄拉克半金属、拓扑外尔半金属和拓扑节线半金属等. 具有高能量、动量分辨率的角分辨光电子能谱技术 (ARPES) 能够解析动量空间电子结构从而直接测量拓扑半金属中的拓扑电子态, 是研究拓扑半金属材料的重要实验手段. 本文系统回顾了利用 ARPES 技术测量的不同类型的典型拓扑半金属的电子结构特别是特征拓扑电子态, 从而为拓扑半金属的物理起源、物性研究以及新奇拓扑半金属的探索提供了重要信息.

**关键词:** 拓扑半金属, 电子结构, 量子材料, 角分辨光电子能谱**PACS:** 71.55.Ak, 71.20.-b, 73.20.-r, 79.60.-i**DOI:** 10.7498/aps.68.20191544

## 1 引言

在凝聚态物理学研究中, 拓扑量子材料作为一类新兴的材料体系引起了学界的广泛关注. 1980年, Klitzing 等<sup>[1]</sup>在硅的金属-氧化物-半导体场效应管 (MOSFET) 中发现了整数量子霍尔效应, 即霍尔电阻随着磁场的增大作阶梯式变化, 而对样品的载流子浓度及迁移率等不敏感. 1982年, Thouless<sup>[2]</sup>等指出, 霍尔电阻对系统自身变化的不敏感是由于量子霍尔效应体系的拓扑不变性, 并将描述它的拓

扑不变量称为 Chern 数. 同年, Tusi 等<sup>[3]</sup>发现了分数量子霍尔效应. 由于不同的分数量子霍尔态具有相同的对称性, 相变无法依靠朗道的对称性破缺理论进行描述和判断, 这表示体系中存在一种新的序, 携对称性一起对不同的物相进行分类, Wen<sup>[4,5]</sup>参考超弦中拓扑场论的概念将其命名为拓扑序. 拓扑量子材料即为一类具有拓扑序的材料. 2006年, Bernevig 等<sup>[6]</sup>预言并证实了量子自旋霍尔效应, 自此开启了拓扑量子材料研究的热潮<sup>[7-10]</sup>. 初期的拓扑量子材料集中于小带隙的半导体 (如强拓扑绝缘体, 量子反常霍尔效应绝缘体等), 在 2012 年前

\* 国家重点研发计划 (批准号: 2017YFA0305400, 2017YFA0304600) 和国家自然科学基金 (批准号: 11774190, 11674229) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: liuzhk@shanghaitech.edu.cn

‡ 通信作者. E-mail: yulin.chen@physics.ox.ac.uk

后, Wan 等<sup>[11]</sup>、Wang 等<sup>[12]</sup>、Young 等<sup>[13]</sup> 预言无能隙的半金属材料中也存在一类具有稳定拓扑态电子结构的特殊体系——拓扑半金属材料. 拓扑半金属材料是一类具有拓扑保护的能带交叠的无能隙拓量子材料, 其低能激发可由三维 Dirac 方程<sup>[14]</sup> 或无质量项的 Weyl 方程<sup>[15]</sup> 等来描述. 随后, 一系列此类材料先后得到了理论预言和实验证实<sup>[16–20]</sup>.

在拓扑半金属材料研究中, 许多实验表征手段都发挥了重要的作用, 例如输运、光学、扫描隧道显微谱学等. 而为了更好地探测拓扑半金属的电子结构, 获得材料电子的运动状态, 同时具有能量、动量分辨率的角分辨光电子能谱 (ARPES)<sup>[21,22]</sup> 是不可或缺的关键技术. ARPES 测量不仅能给出单晶样品在三维动量空间中的能带色散、费米面、能隙等能带的综合信息, 还能获得载流子类型和浓度、有效质量、轨道对称性以及电子与其他自由度的多体相互作用等重要信息. 这些独特的能力使得 ARPES 在拓扑半金属的研究中占据了举足轻重的地位.

本文将系统回顾使用角分辨光电子能谱技术在拓扑半金属方面取得的研究成果, 对于具有代表性的材料总结其特征拓扑电子结构及物理内涵.

## 2 角分辨光电子能谱技术介绍

### 2.1 测量原理

角分辨光电子能谱技术基于光电效应现象: 用光照射材料, 如果光子能量大于材料的功函数, 那么材料内部的电子就能吸收光子从而逸出材料表面, 成为光电子 (如图 1(a)). 根据测得逸出光电子的能量和动量信息, 通过能量和动量守恒律, 能够反推出材料内部的电子运动行为, 即材料的能带结构.

ARPES 测量信号主要来自于样品表面. 根据入射光不同能量, 出射的光电子动能在几至数百电子伏特左右, 根据图 1(b) 中电子非弹性平均自由程  $\lambda$  (简称 IMFP) 与动能的函数关系<sup>[23–25]</sup> 可知, ARPES 实验中产生光电子的平均自由程在图线的最低点附近, 这意味着 ARPES 探测范围是样品表面 1 nm 深度甚至更浅.

ARPES 的能量守恒过程如图 1(c) 所示. 测量出光电子的动能  $E_k$  之后, 通过能量守恒定律可以获得材料内部电子的束缚能  $E_B = h\nu - \Phi - E_k$ , 其中  $\Phi$  为费米能  $E_F$  和真空能级  $E_{vac}$  之间的势垒 (功函数).

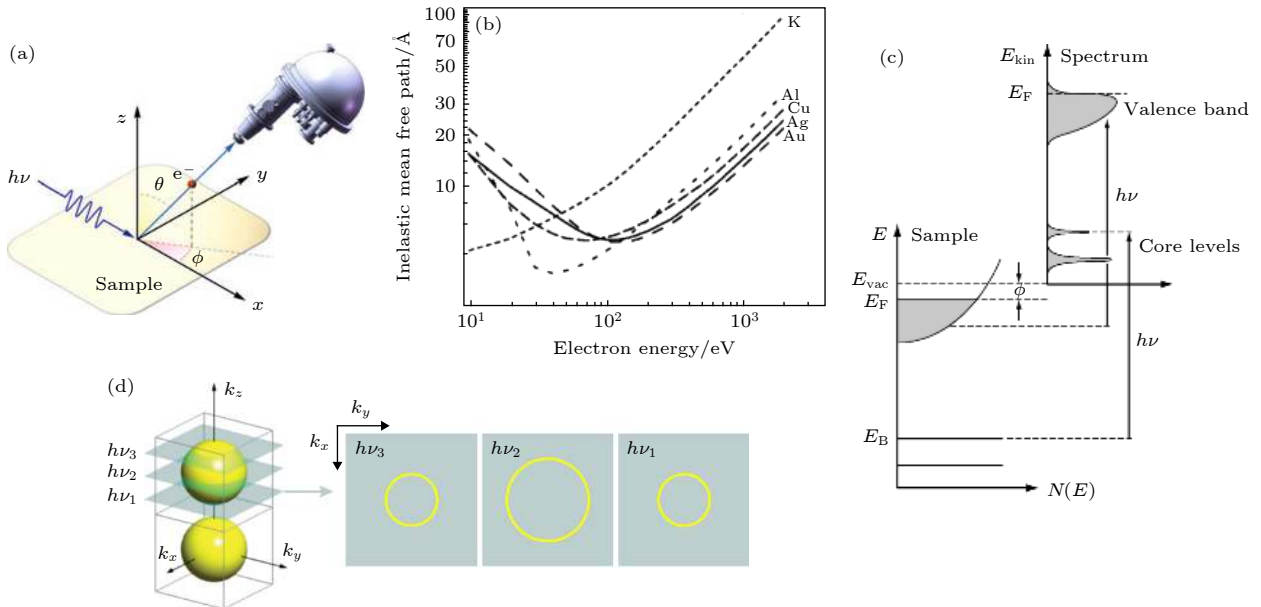


图 1 (a) 光电子能谱实验原理示意图; (b) 光电子非弹性平均自由程与能量关系图; (c) 光电效应过程的能量关系图; (d) ARPES 测量不同  $k_z$  等能面示意图

Fig. 1. (a) Illustration of a photoemission experiment; (b) curve of electric IMFP vs energy; (c) energetics of the photoemission process; (d) illustration different FSs measured by ARPES under different photon energies due to the  $k_z$  dispersion in  $k$ -space of a 3D Fermi Surface.

电子动量可以被分解成两个方向来讨论: 平行于样品表面的动量  $k_{//}$  (包括  $k_x, k_y$ ) 和垂直于样品表面的动量  $k_{\perp}$  ( $k_z$ ). 由于表面势垒的存在, 只有  $k_{//}$  在光电效应过程中守恒:

$$k_{//, \text{样品电子}} = k_{//, \text{光子}}. \quad (1)$$

故而 (角度  $\phi$  和  $\theta$  见图 1(a)):

$$k_{x, \text{样品电子}} = k_{x, \text{光子}} = \frac{\sqrt{2m_e E_k}}{\hbar} \sin \theta \cos \phi, \quad (2)$$

$$k_{y, \text{样品电子}} = k_{y, \text{光子}} = \frac{\sqrt{2m_e E_k}}{\hbar} \sin \theta \sin \phi. \quad (3)$$

垂直于样品表面的动量部分  $k_{\perp}$  是不守恒的, 不能像  $k_{//}$  一样直接测量, 需要基于一定的假设才能得到  $k_{\perp}$  信息. 一个经常使用的经验性假设是自由电子末态假设. 它假定光激发过程的初末态均为 (有效质量不同的) 自由电子态, 且定义因材料而异的参数内势 ( $V_0$ , 取决于材料的本身性质) 为初末态带底间的能量差. 那么,

$$\begin{aligned} k_{\perp, \text{样品电子}} &= \sqrt{\frac{2m_e^*}{\hbar^2} (E_k + V_0) - k_{//}^2} \\ &= \sqrt{\frac{2m_e^*}{\hbar^2} (E_k + V_0) - \frac{2m_e^* E_k}{\hbar^2} \sin^2 \theta}, \quad (4) \end{aligned}$$

其中  $\theta$  是电子发射角,  $m_e^*$  是电子在末态的有效质量. ARPES 实验中  $k_{\perp}$  方向色散的测量是通过使用不同光子能量测量来实现的, 通过改变入射光子能量从而改变光电子动能  $E_k$ , 从而能够覆盖足够范围的  $k_{\perp}$ , 以此来获得能带  $k_{\perp}$  方向色散, 并能够区分表面态和体态 (表面态沿着  $k_{\perp}$  无色散), 如图 1(d) 所示.

## 2.2 仪器设备

常见的 ARPES 系统由光源、电子能量分析器、样品操纵台、真空系统等组成.

光源用以激发材料中光电子. 目前常用的 ARPES 使用的光源包括: 深紫外激光、气体放电灯<sup>[26]</sup> (如氦灯、氙灯等) 和同步辐射光源<sup>[27]</sup> 等. 深紫外激光光源往往采用倍频晶体 (如  $\beta$ -硼酸钡 (BBO), 氟代硼铍酸钾 (KBBF) 晶体等) 或者气体非线性高次谐波过程产生深紫外激光. 氦灯能以冷阴极辉光放电的形式辐射出氦特征谱线, 常见能量为 21.2 eV (He I $\alpha$ )<sup>[28]</sup>. 同步辐射光源是最理想的 ARPES 光源, 它使用波荡器等在电子存储环内弯曲高速电子的运动轨道来获得同步辐射光. 同步辐

射光具有较强亮度 (第三代同步辐射光源可达到  $10^{11}$  photons/s/0.01%BW@800 eV) 且具有偏振及大范围光子能量调节能力<sup>[29]</sup>, 广泛适用于各种材料体系的 ARPES 研究. 图 2 展示了一个典型的位于中国上海同步辐射光源的 ARPES 工作站 (BL03U).

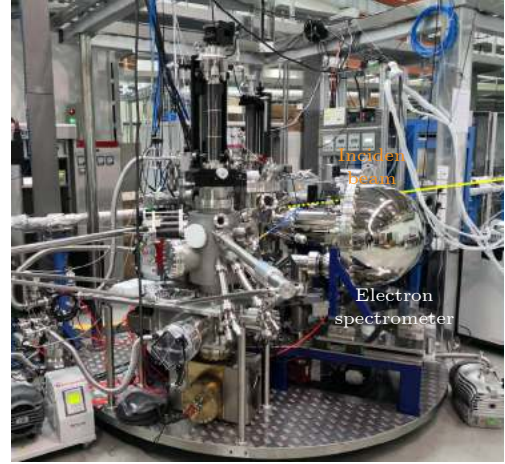


图 2 上海光源中同步辐射束线 BL03U 搭载的空间分辨角分辨光电子能谱实验工作站图

Fig. 2. A picture of the synchrotron-based nano-ARPES workstation in SSRF BL03U.

电子能量分析器是收集并测量出射光电子的能量和发射角度 (从而计算得到电子动量) 的重要部件. 目前, 大多数 ARPES 装置使用的分析器是静电型半球型偏转分析器 (hemispherical deflection analyzer, HDA), 它能在一次实验测量中提供沿某个动量方向的能带信息. 为了得到另一个动量方向的能带结构, 还需要改变样品角度或电子偏转电压以探测电子另一方向发射角的信息.

样品操纵台是安放、处理和操控样品位置和温度的设备. 通常有两个功能: 第一, 承载样品, 将样品送到测量位置, 并在测量中改变样品与能量分析器的相对角度和位置从而实现整个动量空间能带结构数据的获取; 第二, 通过冷却剂及加热器对样品温度进行控制, 测量电子结构随温度的改变.

真空系统由真空腔体和配套真空泵系统 (含机械泵、分子泵、离子泵、钛升华泵及吸附泵等) 构成. 它为测量提供超高真空环境 (约  $10^{-11}$  Torr (1 Torr  $\approx$  133.322 Pa)), 以确保样品有较长寿命 (较差真空中的残余气体分子会污染样品表面) 和出射的光电子能到达电子能量分析器.

### 3 拓扑狄拉克半金属的角分辨光电电子能谱研究

拓扑狄拉克半金属是首个经由 ARPES 获得实验证实的拓扑半金属体系。

在拓扑狄拉克半金属中, 导带和价带交叠形成分立的四度简并的点——狄拉克点. 能带在狄拉克点附近行为满足狄拉克方程, 在各个动量方向均呈现线性色散关系 (图 3(a)). 狄拉克点受对称性 (晶体对称性、时间及空间反演对称性) 保护, 具有拓扑稳定性。

狄拉克半金属 (DSM) 可分为两类: 1) 具有正立狄拉克锥, 满足洛伦兹不变性的第一类狄拉克半金属; 2) 具有倾斜狄拉克锥, 破坏洛伦兹不变性的第二类狄拉克半金属. 经由调制费米能级, 第一类狄拉克半金属费米面能够只包含若干分立点, 而第二类狄拉克半金属则包含电子和/或空穴型口袋, 因此两者分别具有高磁阻、高迁移率和高载流子浓度、高电导率等电学输运重要性质。

### 3.1 第一类狄拉克半金属

首个经由理论预言且得到实验证实的第一类狄拉克半金属材料是具有三度旋转对称性的层状材料  $\text{Na}_3\text{Bi}$  (图 3(b)). 2012 年, 物理所 Wang 等 [12] 的第一性原理计算预言, 在  $\text{Na}_3\text{Bi}$  的动量空间中  $\Gamma$ -A 方向存在一对三维狄拉克点 (图 3(e)). 这对狄拉克点由靠近费米面附近的导带和价带发生能带反转而相交形成, 其中, 价带顶大部分由  $\text{Na}(1)$ -3s 提供, 导带底则大部分来源于  $\text{Bi}$ -6 $p_{xy}$  轨道, 两带归属于不同的不可约表象. 由于体系同时存在空间和反演对称性, 能带相交形成的狄拉克点为 4 度简并. 并且, 该狄拉克点受  $\text{Na}_3\text{Bi}$  晶体的三重旋转对称性的保护而得以稳定存在. 如果通过外加压力等方法打破晶体的三次旋转对称性, 则将引入相互作用项使其电子结构打开能隙变为绝缘体。

随后, Liu 等 [18] 用 ARPES 直接测得了  $\text{Na}_3\text{Bi}$  的 (001) 解离面的能带结构, 并观测到了三维狄拉克点和狄拉克点附近沿各个动量方向的线性能带色散. 如图 3(f) 所示, 实验测得的沿着  $k_z$  方向的费米面主要由 A- $\Gamma$ -A 方向的两个点状费米面构成,

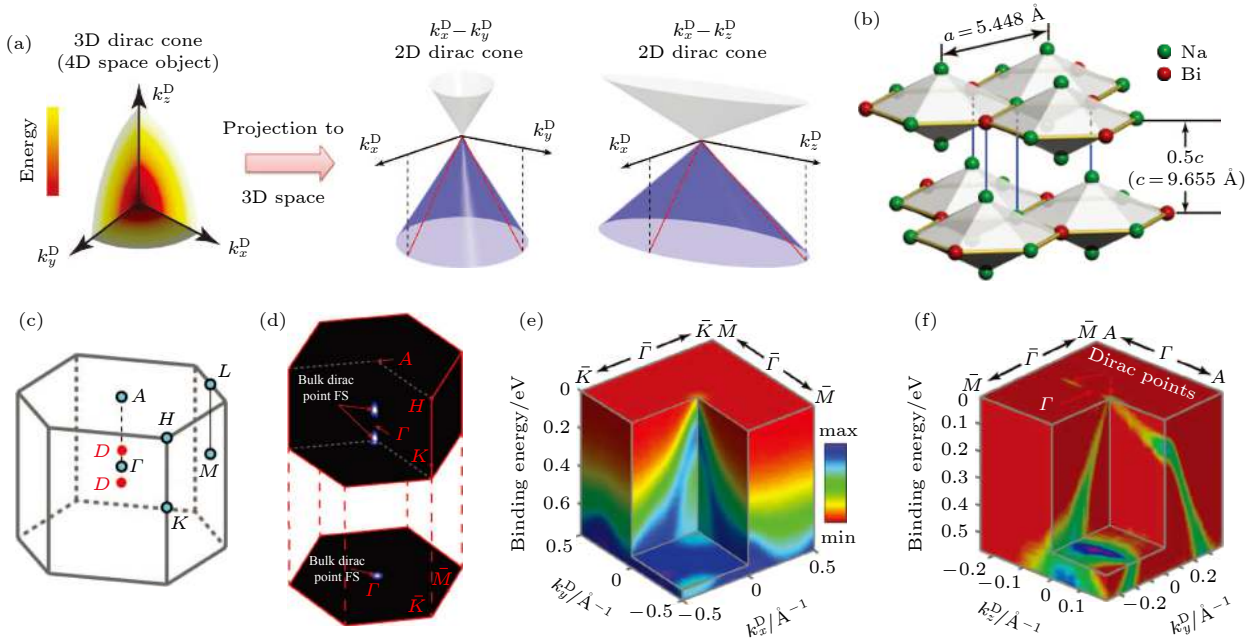


图 3 (a) 三维狄拉克费米子在能-动量四维空间示意图及其在不同三维能-动量子空间的投影; (b)  $\text{Na}_3\text{Bi}$  的晶体结构示意图; (c)  $\text{Na}_3\text{Bi}$  的第一布里渊区示意图; (d) 在三维动量空间中的实验测量费米面 (上半图) 及其在表面布里渊区的投影 (下半图) (e) (f) 狄拉克点处沿  $k_y$ - $k_x$  和  $k_y$ - $k_z$  方向的三维光电子谱图

Fig. 3. (a) Illustration of a 3D Dirac Fermion in 4D energy-momentum space and its projection onto different 3D subspace; (b) the crystal structure of  $\text{Na}_3\text{Bi}$ ; (c) 1<sup>st</sup> Brillouin zone of  $\text{Na}_3\text{Bi}$ ; (d) measured Fermi surface map across the whole 3D BZ (top panel) and its projection on the surface BZ (bottom panel) on pristine surfaces. 3D intensity plot of the photoemission spectra (e) along the  $k_y$ - $k_x$  direction and (f) along the  $k_y$ - $k_z$  direction at the Dirac point.

这两个点状费米面就是三维体狄拉克点. 进一步地, 在狄拉克点附近可以通过扫描  $k_x-k_y-E$  电子结构以及通过能量依赖扫描  $k_y-k_z-E$  电子结构, 验证围绕狄拉克点的电子能带呈现线性色散 (三维狄拉克锥)(如图 3(e) 和图 3(f)). 通过这些特征电子结构, ARPES 直接证明了  $\text{Na}_3\text{Bi}$  为三维拓扑狄拉克半金属.

在狄拉克半金属中, 一个狄拉克点往往可以看作是两个手性相反的外尔点重合而构成 (由于旋转对称性的保护, 重合的外尔点没有发生“湮灭”而打开能隙), 那么可能会出现连接狄拉克点的拓扑表面态. 对  $\text{Na}_3\text{Bi}$  而言, 这个拓扑表面态不会出现在 (001) 面上 (在表面布里渊区中, 两个狄拉克点重合在一起), 但很可能会出现与 (001) 面垂直的侧面解理面上 (如沿 (100) 面解理<sup>[30,31]</sup>, 图 4(d)—图 4(f)). 图 4(b) 和图 4(c) 展示了 (100) 面测得的能带结构, 可以观察到动量空间中  $\Gamma$  点附近连接两个狄拉克点的一对费米弧表面态 (图 4(a) 和图 4(b)). 由于晶格对称性的保护, 体态的三维狄拉克点和非平庸的表面电子态 (如图 4(b), 图 4(c) 和图 4(f) 中费米弧表面态 SS) 可以同时稳定存在, 沿  $\bar{A}-\bar{\Gamma}-$

$\bar{K}$  方向计算得出的投影能谱如图 4(e) 所示, 费米面处  $\bar{\Gamma}-\bar{A}$  方向体态能带收缩成了一个狄拉克点, 而  $\bar{\Gamma}-\bar{K}$  方向则为一条穿过费米面的表面态结构. 此外, 理论计算显示费米面上的这一对费米弧具有螺旋形的自旋构型, 如图 4(d) 所示.

除了  $\text{Na}_3\text{Bi}$  之外, 通过理论计算和实验验证还发现了  $\text{Cd}_3\text{As}_2$  也是一种典型的拓扑狄拉克半金属<sup>[17,19,32]</sup>.  $\text{Cd}_3\text{As}_2$  具有较复杂形成缺陷序的晶体结构, 但其特征拓扑电子结构 (三维狄拉克点构型和狄拉克锥) 与  $\text{Na}_3\text{Bi}$  较为类似. 此外, 相比  $\text{Na}_3\text{Bi}$ , 此材料的优势是在空气中稳定, 并具有极高的体态电子迁移率 (130 K 时可达  $40000 \text{ cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ ), 及相当大的线性量子磁阻等优良性质<sup>[33]</sup>. 最近, 研究者在  $\text{Cd}_3\text{As}_2$  纳米片中观测到手性异常导致的平面霍尔效应<sup>[34]</sup>, 且获得了由外尔轨道形成的新型三维量子霍尔效应的直接证据<sup>[35]</sup>. 此外, 从此材料出发能够诱导出一系列拓扑相, 如在压力驱动下破坏晶体对称性后可被驱动至拓扑绝缘体和 Weyl 半金属态, 在二维极限下变为具有较大能隙的量子自旋霍尔绝缘体相等, 为研究新奇拓扑和拓扑相变提供了优良的材料平台.

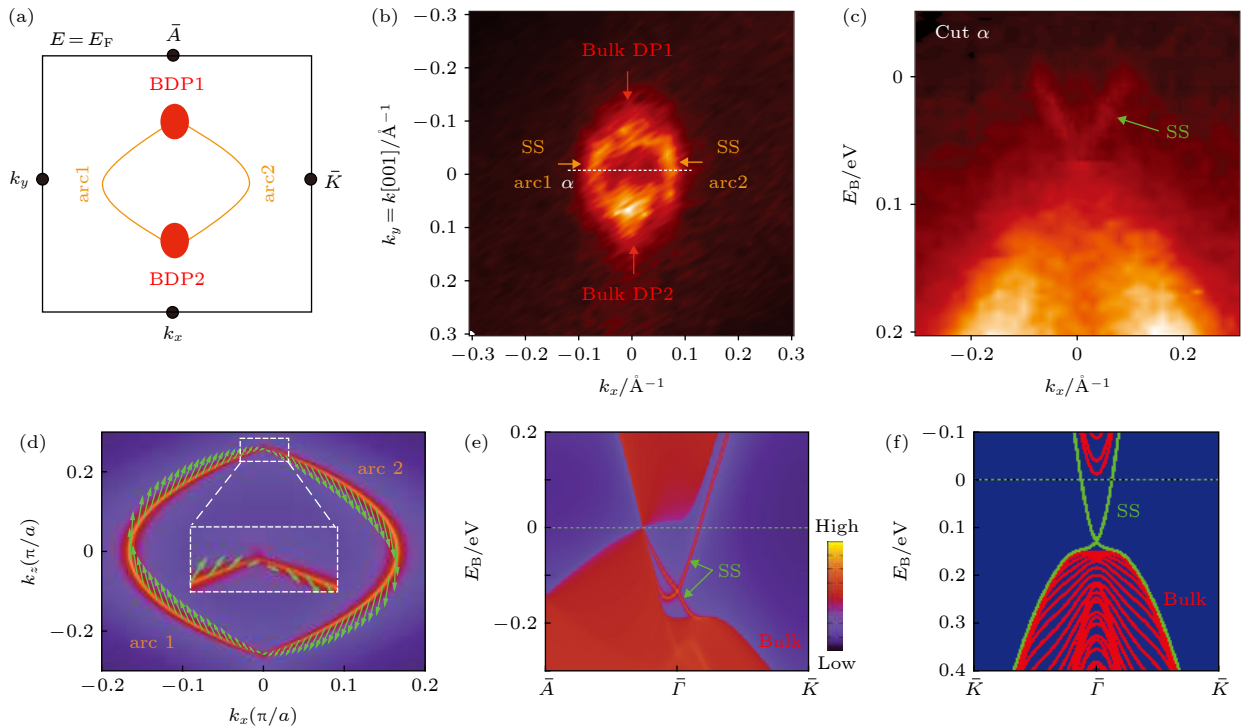


图 4 (a) 沿 (100) 解理的  $\text{Na}_3\text{Bi}$  费米面示意图; (b) ARPES 实验测得的费米面图像; (c) 图 (b) 中沿  $\alpha$  方向切出的能谱; (d) 费米弧的理论自旋织构图; (e) 沿  $\bar{A}-\bar{\Gamma}-\bar{K}$  方向的能带结构图; (f)  $k_y = 0$  时图 (c) 对应的  $\bar{K}-\bar{\Gamma}-\bar{K}$  方向理论计算投影能谱

Fig. 4. (a) Schematic of Fermi surface in  $\text{Na}_3\text{Bi}$  cleaved along (100) direction; (b) Fermi surface measured by ARPES experiment; (c) spectrum cut along  $\alpha$  from (b); (d) theoretical calculated spin texture of Fermi arcs; (e) band structure along  $\bar{A}-\bar{\Gamma}-\bar{K}$ ; (f) calculated  $\bar{K}-\bar{\Gamma}-\bar{K}$  projected bands corresponding to (c) when  $k_y = 0$ .

### 3.2 第二类狄拉克半金属

由于凝聚态物理中的准粒子激发不需要遵循高能粒子的洛伦兹不变性, 在拓扑量子材料中研究者们可以观测到粒子物理学标准模型描述的基本粒子外的新型准粒子激发. 如第二类狄拉克费米子破坏了洛伦兹不变性, 其狄拉克锥色散会沿动量空间中的特定方向发生显著倾斜, 从而导致动量空间中能量-动量关系的剧烈变化. 例如在第二类狄拉克半金属  $\text{PtSe}_2$ <sup>[36,37]</sup> 中, 狄拉克锥在面内 ( $k_x$ - $k_y$ - $E$  空间) 呈现与第一类狄拉克半金属类似的正立锥形状 (图 5(a)—图 5(c)), 而在面外 ( $k_x$ - $k_z$ - $E$  方向) 则呈现出显著倾斜的狄拉克锥形状 (图 5(d) 和图 5(e)). 此形状预示着较大的狄拉克型载流子浓度, 从而第二类狄拉克半金属带来高电导率等各项奇异物性.

下面以 1 T 相的过渡金属二硫化物类材料 (如  $\text{PtTe}_2$ <sup>[38]</sup>,  $\text{PdTe}_2$ <sup>[39-42]</sup> 等) 为例介绍第二类狄拉克半金属的形成机制. 成键、晶体场劈裂以及自旋

轨道耦合会导致原子 p 轨道产生能级劈裂. 由于面外  $p_z$  轨道与面内的  $p_x$  或  $p_y$  轨道相比具有更大的  $z$  方向延展性, 往往会表现出各向异性. 特别是,  $p_x$  或  $p_y$  轨道产生的能带 (图 6(b) 中的  $E$  带) 随  $k_z$  变化而出现的色散变化很小, 而  $p_z$  轨道产生的能带 (图 6(b) 中的  $A_1$  带) 则受  $k_z$  变化的影响很大. 当层间跳跃产生的影响大于晶体场劈裂时,  $A_1$  带将与  $E$  带相交. 其中宇称相反的  $R_4^+$  和  $R_4^-$  带具有同样的对称性和角动量, 他们之间的杂化会在能带交叉处出现反转的能隙 (如图 6(d)); 同时由于  $R_4^+$  与  $R_{5,6}^-$  属于不同的不可约表象, 在  $C_3$  旋转对称性的保护下会形成体态的第二类狄拉克点 (图 6(d) 中所标绿色点). 这个狄拉克点形成于动量空间布里渊区  $\Gamma$ - $A$  对称点之间, 具体位置由带宽以及晶体场劈裂的强度所决定.

以过渡金属二硫化物中的  $\text{PdTe}_2$  为例,  $\text{PdTe}_2$  的晶体为如图 6(a) 所示的三角晶格 (No.164  $P-3m1$  空间群), 动量空间第一布里渊区

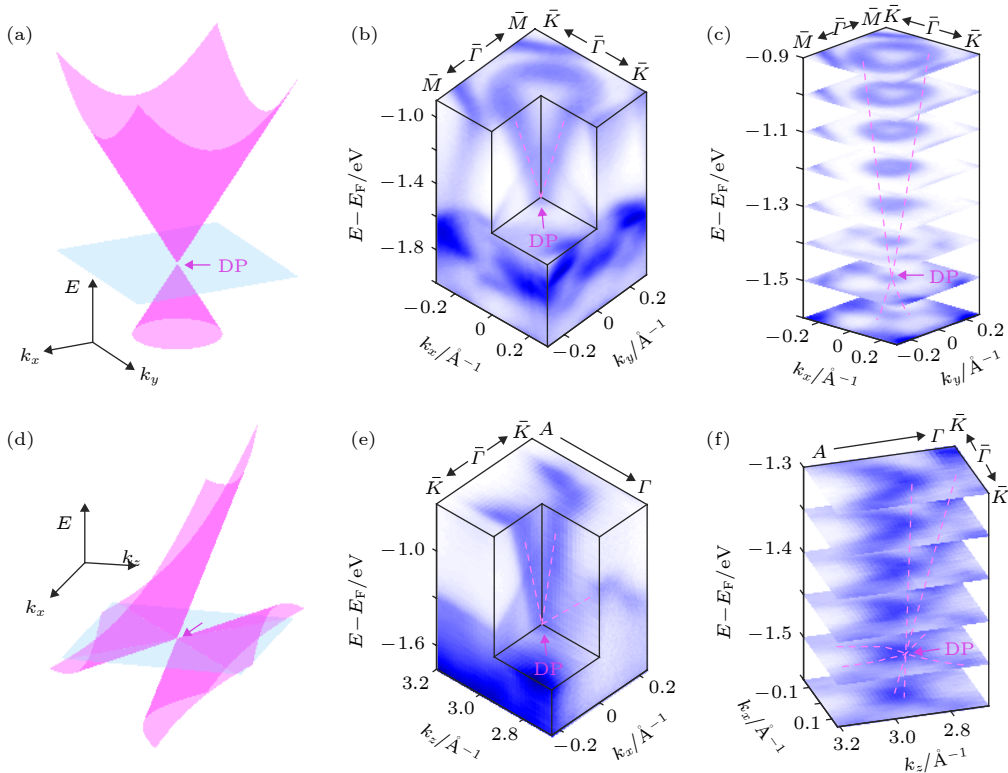


图 5 第二类狄拉克锥的三维示意图 (a) 投影在  $k_x$ - $k_y$ - $E$  空间上的第二类狄拉克锥简图; (b)  $\text{PtSe}_2$  中  $k_x$ - $k_y$  面内切过第二类狄拉克点的三维色散能谱图 (光能 24 eV), 狄拉克点由紫色箭头指出; (c) 放大的图 (b) 中 ARPES 等能面堆叠图; (d) 投影在  $k_y$ - $k_z$ - $E$  空间上的第二类狄拉克锥简图; (e) 三维  $k_z$  依赖的色散能谱图 (光能 18—33 eV); (f) 放大的图 (e) 中 ARPES 等能面堆叠图  
Fig. 5. 3D visualization of type-II Dirac cone: (a) Schematic of type-II Dirac cone projected on  $k_x$ - $k_y$ - $E$  space; (b) 3D ARPES map ( $h\nu = 24$  eV) which slices through the type-II BDP (pointed out by magenta arrow); (c) zoomed-in ARPES constant energy contours (CECs) of Fig.(b); (d) schematic of type-II Dirac cone projected on  $k_y$ - $k_z$ - $E$  space; (e) 3D  $k_z$ -dependent map ( $h\nu = 18-33$  eV); (f) zoomed-in ARPES CECs of Fig. (e).

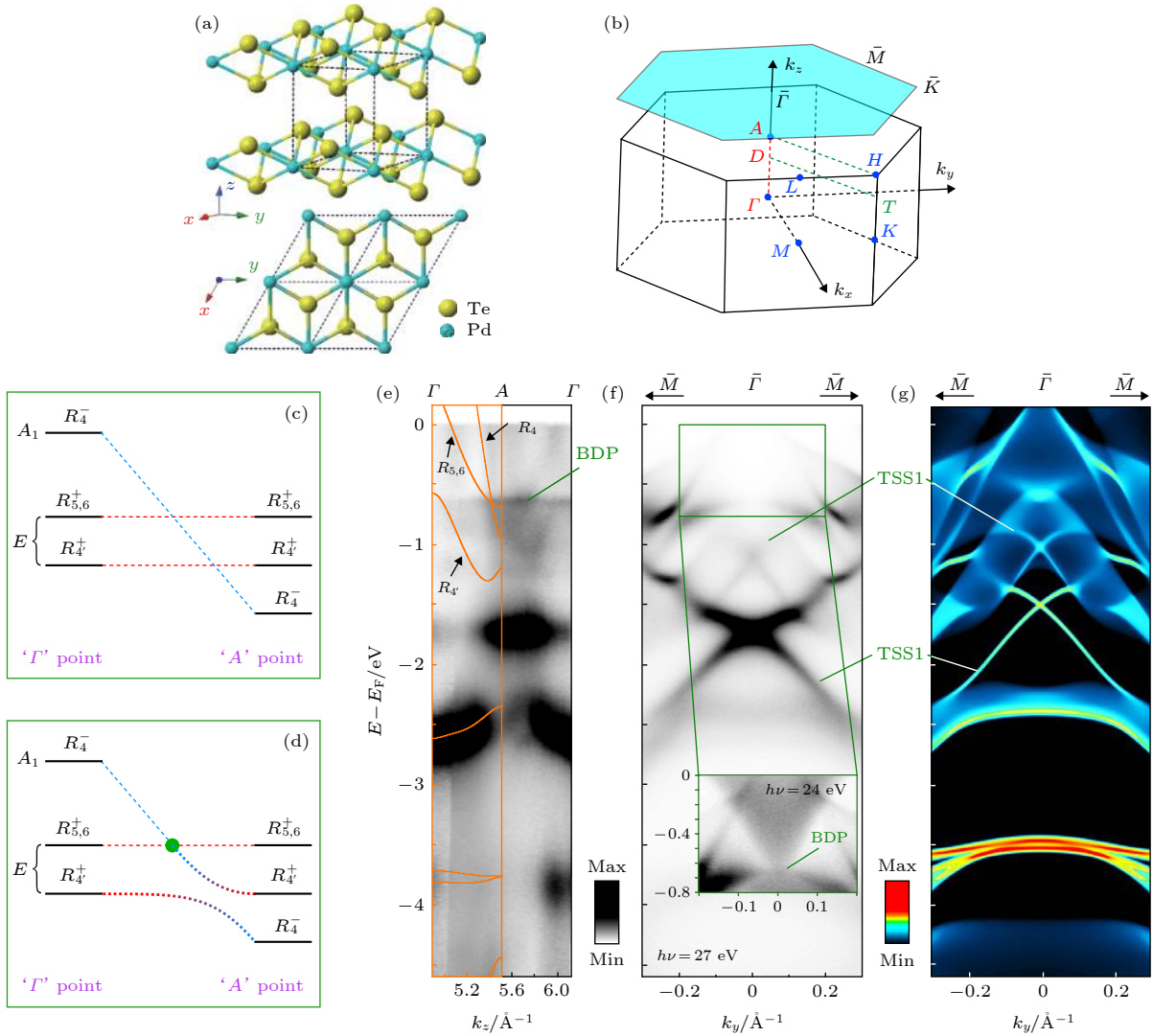


图 6 (a) PdTe<sub>2</sub> 型材料的晶体结构 (及其俯视图) 和 (b) 第一布里渊区 (蓝色所示为 (001) 表面布里渊区); (c) 忽略杂化和 (d) 考虑杂化时晶体场产生的能级随  $k_z$  动量变化的演化,  $A_1$  与  $E$  产生的能级在绿点处出现受保护的交界点; (e) 沿  $\Gamma$ -A- $\Gamma$  方向的 ARPES 能谱 (横轴为光能 80—132 eV 对应的  $k_z$  区间), 黄线为理论计算的能带; (f) 沿表面布里渊区  $\bar{M}$ - $\bar{\Gamma}$ - $\bar{M}$  方向的 ARPES 能谱 (光能 27 eV), 小图为 24 eV 时的局部放大图; (g) 理论计算的表面布里渊区能带投影图

Fig. 6. (a) Crystal structure (with its top view) and (b) 1<sup>st</sup> Brillouin zone (with surface BZ marked in blue) of PtTe<sub>2</sub>; (c) (d) evolution of crystal-field-derived levels with the out-of-plane  $k_z$  momentum when hybridization is (c) neglected or (d) included, showing a protected crossing of the  $A_1$  and  $E$ -derived levels; (e) ARPES spectrum along  $\Gamma$ -A- $\Gamma$  direction ( $k_z$  corresponding to  $h\nu = 80$ –132 eV) with calculated bands (yellow lines) attached; (f) ARPES spectrum along  $\bar{M}$ - $\bar{\Gamma}$ - $\bar{M}$  direction ( $h\nu = 27$  eV); (g) calculated energy bands projected on surface Brillouin zone.

为六棱柱 (如图 6(c)). 在 ARPES 实验随  $k_z$  变化测量所得的  $\Gamma$ -A 方向能谱 (图 6(e)) 中, 发现在靠近高对称 A 点的费米面以下约 0.65 eV 处, 能带  $R_4$  与  $R_{5,6}$  交叉处出现与第一性原理计算预言 (图 6(e) 中橙线和图 6(g)) 相符合的第二类体态狄拉克点. 在入射光能为 24 eV 时,  $E$ - $k_y$  的能谱图中清楚地看到费米面下的第二类狄拉克点 (如图 6(f) 中小图). Pt 族过渡金属二硫化物体系中的第二类狄拉克半金属涉及三条以上能带的能带反转, 因此可形成丰富的拓扑非平庸表面态, 如图 6(g) 中在

更高结合能能带反转产生的能隙中 (费米面下约 1.1 和 1.7 eV 处) 发现了由拓扑表面态交叉而成的狄拉克锥.

### 3.3 破坏时间反演对称性的狄拉克半金属

除上述介绍的同时满足时间和空间反演对称性的狄拉克半金属材料之外, 近期有理论预言存在破坏时间反演对称性的狄拉克半金属, 如 CuMnAs<sup>[43,44]</sup>, FeSn<sup>[45,46]</sup>, EuCd<sub>2</sub>As<sub>2</sub><sup>[47,48]</sup>, EuCd<sub>2</sub>Sb<sub>2</sub><sup>[49]</sup> 等. 这给狄拉克半金属的材料探索拓展了新的

方向.

如华中科技大学的 Hua 等<sup>[50]</sup>通过 DFT 计算预言层间反铁磁材料  $\text{EuCd}_2\text{As}_2$  是仅有一对狄拉克点的反铁磁狄拉克半金属. 在该体系中, 尽管时间反演对称性被打破, 但系统具有在非点式空间操作和时间反演联合操作下的对称性, 这和体系的空间反演对称性一起确保了体系能带的两重简并和体狄拉克点的四重简并. 近期 ARPES 研究则观察到了  $\text{EuCd}_2\text{As}_2$  顺磁相中由于自旋涨落破坏时间反演对称性诱导的外尔半金属态<sup>[48]</sup>.

此外反铁磁的 Kagome 层状材料  $\text{FeSn}$  被理论预言处于反铁磁狄拉克半金属态. 该狄拉克点源自 Kagome 对称性下的面内局部  $\text{Fe}_{3d}$  轨道<sup>[45]</sup>, 受到时间-空间反演联合对称性和非同构  $S_{2z}$  对称性保护. 打破某一对称性能够将无质量狄拉克费米子转换为无质量的外尔费米子或有质量的狄拉克费米子<sup>[46]</sup>.

磁性狄拉克半金属为研究拓扑和强关联电子的耦合以及自旋电子器件等应用探索提供一个理想的平台, 因此成为了拓扑材料研究的新热点之一.

## 4 拓扑外尔半金属

1929 年, 德国物理学家 Weyl<sup>[15]</sup>发现, 当  $4 \times 4$  的狄拉克方程中质量项为 0 的时候, 狄拉克方程会转变成  $2 \times 2$  的波动方程——外尔方程:

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \psi = \hat{H} \psi, \hat{H} = c\sigma \cdot \vec{p}, \quad (5)$$

满足该方程的粒子为高能物理中预言的一种质量为 0、自旋 1/2 的准粒子——外尔费米子. 方程中  $\sigma$  是  $2 \times 2$  的泡利矩阵,  $\sigma \cdot \mathbf{p}$  守恒, 粒子自旋沿动量方向的投影  $\sigma \cdot \mathbf{p}/|\mathbf{p}| = \pm 1$ , 取 +1 时为右旋的外尔费米子, 取 -1 时则为左旋.

在凝聚态物理体系中, 从拓扑狄拉克半金属出发, 通过打破晶体对称性或者时间反演对称性的保护, 研究者们可以实现拓扑外尔半金属态, 其中四重简并的狄拉克点分离为一对两重简并且手性相反的外尔点, 不同手性的外尔点之间会有费米弧表面态 (非闭合的费米面) 相连接, 这种表面态投影形成的费米弧以及体态外尔锥是外尔半金属 (WSM) 根本的特性. 这些非平庸的拓扑能带结构能导致一系列重要的物理现象, 包括手性反常、三

维量子霍尔效应、非局域电磁效应等.

破缺时间反演或者空间反演对称性, 是形成外尔半金属相的先决条件 (但若两者同时破缺, 能带交叉会形成四度简并的狄拉克点). 与狄拉克半金属一样, 也可以把外尔半金属分为第一类和第二类外尔半金属.

### 4.1 第一类外尔半金属的角分辨光电子能谱研究

#### 4.1.1 空间反演对称性破缺的外尔半金属

虽然最早的拓扑外尔半金属在破坏时间反演对称性的体系中 (如  $\text{HgCr}_2\text{Se}_4$ <sup>[51]</sup> 及  $\text{Y}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ <sup>[11]</sup>) 被预测, 但由于实验和样品制备的困难, 拓扑外尔半金属相在破坏空间反演对称性的系统中获得实现, 首个发现的外尔半金属体系是 TaAs 家族化合物, 由中国科学院物理所的 Lv 等<sup>[52, 53]</sup>、普林斯顿大学的 Xu 等<sup>[20]</sup> 及清华大学的 Yang 等<sup>[54, 55]</sup> 完成了实验发现. TaAs 晶体为体心四方结构 (如图 7(a)), 空间群为破坏空间反演对称性的  $I_4md$  (No.109). 中科院物理所 Weng 等<sup>[56]</sup> 通过理论计算预言其动量空间布里渊区中存在 12 对 24 个手性相反的外尔费米子, 图 7(c) 中红色和蓝色标出的点即手性分别为 -1 和 +1 的外尔点, 其中 8 个外尔点 (称作 W2) 分布在  $\Gamma\Sigma X$  面上, 而另外 16 个外尔点 (称作 W1) 分布于面外的布里渊区中, 不同手性的成对外尔点之间由费米弧表面态相连 (如图 7(c)(iii)), 这些特征拓扑电子结构证实了 TaAs 外尔半金属的性质. 外尔点附近的贝里曲率呈刺猬状分布, 这与实空间中点电荷产生的电场分布类似, 手性为 -1 的外尔点的贝里曲率皆从内向外发散, 手性 +1 的则反之, 这表明了它们是“动量空间中的磁单极子” (如图 7(b)).

利用基于同步辐射的 ARPES 实验能够在 TaAs 的 (001) 面上直接观测到这些特征拓扑电子结构. 如图 8 所示, 通过使用较高光能的光子, 能够抑制表面电子态的影响, 从而主要测量来自于体态的光电子能谱<sup>[20]</sup>. 经过调整光子能量探测到合适的布里渊区位置, ARPES 实验能够观测到成对出现的外尔点和呈现线性色散的外尔锥. 而通过较低光子能量对表面电子态更为敏感的 ARPES 测量, 能在费米面上观察到连接不同手性外尔费米子投影的费米弧. 如图 7(d) 所示, 在成对外尔费米子



投影 W2 和 W1 附近, ARPES 测量能找到多套表面态, 其中包含有平庸表面态及非平庸费米弧态 (如图 8(f) 中圈出的连接成对外尔点 W1 的两条弧线). 对其中的费米弧的具体认定尚有争议, 但其存

在性可以通过选取闭合路径计算穿越费米面数目为奇数次的方式证明 (图 7(e)) [52]. 此外, 费米弧具有非平庸自旋织构 (如图 7(g) 中白色箭头所示). 图 7(h) 中揭示了通过自旋分辨 ARPES 方法测量

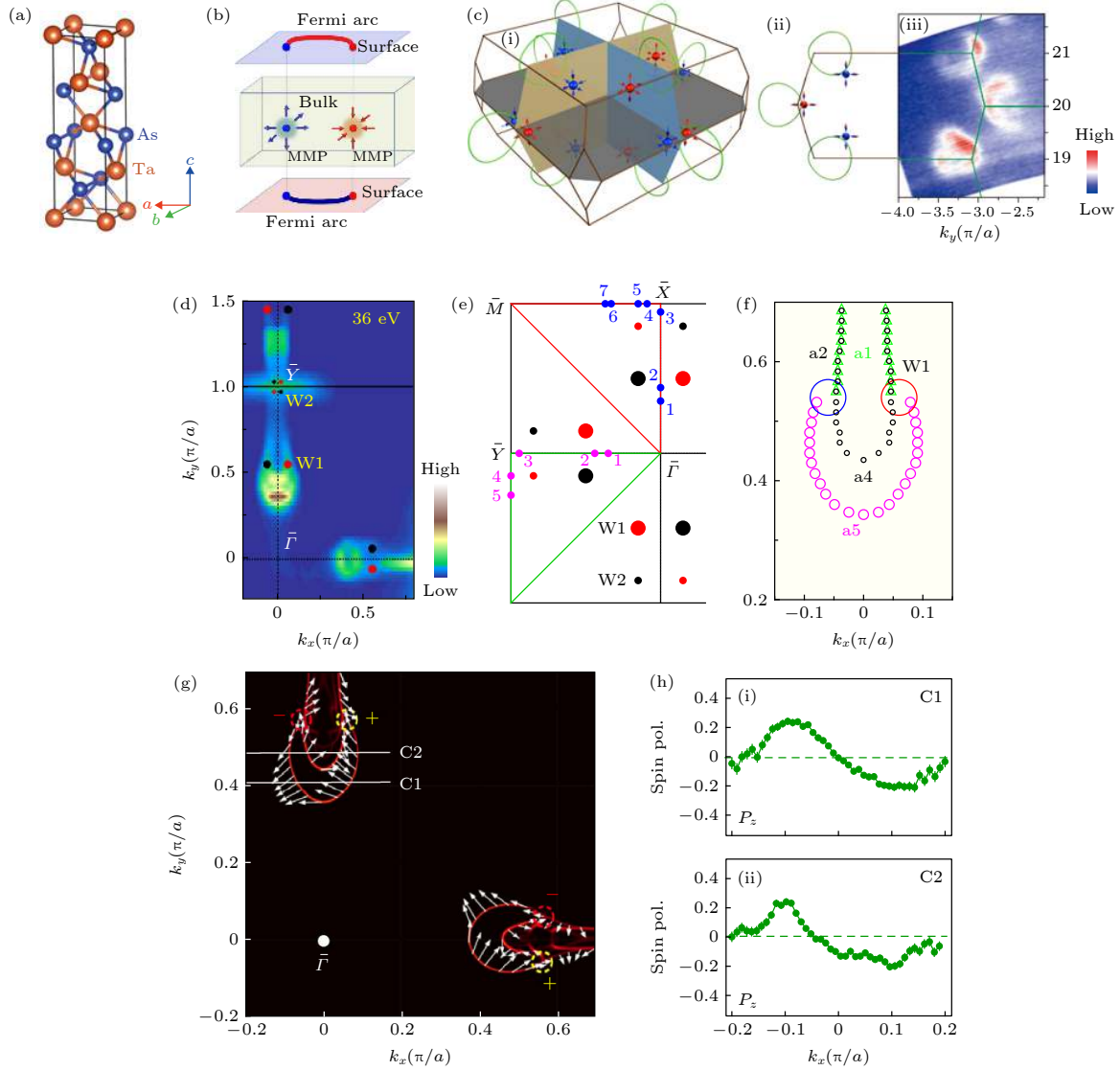


图 7 (a) TaAs 的晶体结构; (b) 有自旋极化费米弧的外尔半金属电子结构示意图 (红色和蓝色分别代表不同的手性. 为清晰起见, 图中只画出了顶面和底面的表面态); (c) 理论计算的第一布里渊区中外尔费米子及费米弧位置及其 (ii) 俯视图, (iii) 为费米能级处  $k_y-k_z$  面上 ( $k_x=0$ ) 光电子强度谱的等能面能谱, 绿线为  $k_y-k_z$  面上的布里渊区边线; (d) ARPES 实验 (光能 36 eV) 所得的  $k_x-k_y$  费米面; (e) 选取闭合路径计算能带穿越费米面数目的示意图, 紫色及蓝色圆点代表能带穿越  $\bar{\Gamma}-\bar{X}-\bar{M}-\bar{\Gamma}$  和  $\bar{\Gamma}-\bar{Y}-\bar{M}-\bar{\Gamma}$  闭合回路的位置; (f) 费米面上 W1 外尔点附近理论计算的局部放大图; (g) 理论计算的费米面上表面态自旋织构 (白色箭头为面内自旋极化方向); (h) 沿图 (g) 中 C1, C2 在  $P_z$  方向的角分辨自旋极化情况

Fig. 7. (a) Crystal structure of TaAs; (b) schematic of a WSM electronic structure with spin-polarized Fermi arcs connecting projections of two bulk Weyl nodes (The red and blue colors represent opposite chirality. For clarity, only surface states on the top and bottom surfaces are indicated); (c) (i) calculated position of Weyl Fermions and Fermi arcs in 1<sup>st</sup> BZ with its (ii) top view; (iii) shows the photoemission intensity plot at  $E_F$  in the  $k_y-k_z$  plane at  $k_x=0$  (The green lines represent the BZ structure in the  $k_y-k_z$  plane.); (d) Fermi surface measured by ARPES experiment ( $h\nu=36$  eV); (e) illustration of band numbers crossing an arbitrary  $k$  loop. Blue and magenta circles indicate the locations where the bands cross the enclosed  $k$  loop  $\bar{\Gamma}-\bar{X}-\bar{M}-\bar{\Gamma}$  and  $\bar{\Gamma}-\bar{Y}-\bar{M}-\bar{\Gamma}$  at  $E_F$ , respectively. (f) zoomed-in experimental and theoretical Fermi surface near W1 Weyl point (spin polarizations of Fermi arc marked by red arrows); (g) theoretical spin texture of surface states on Fermi surface (spin polarization indicated by white arrows); (h) angle-resolved spin polarizations along C1, C2 (marked in Fig. (g) with white lines) in the  $z$  direction.

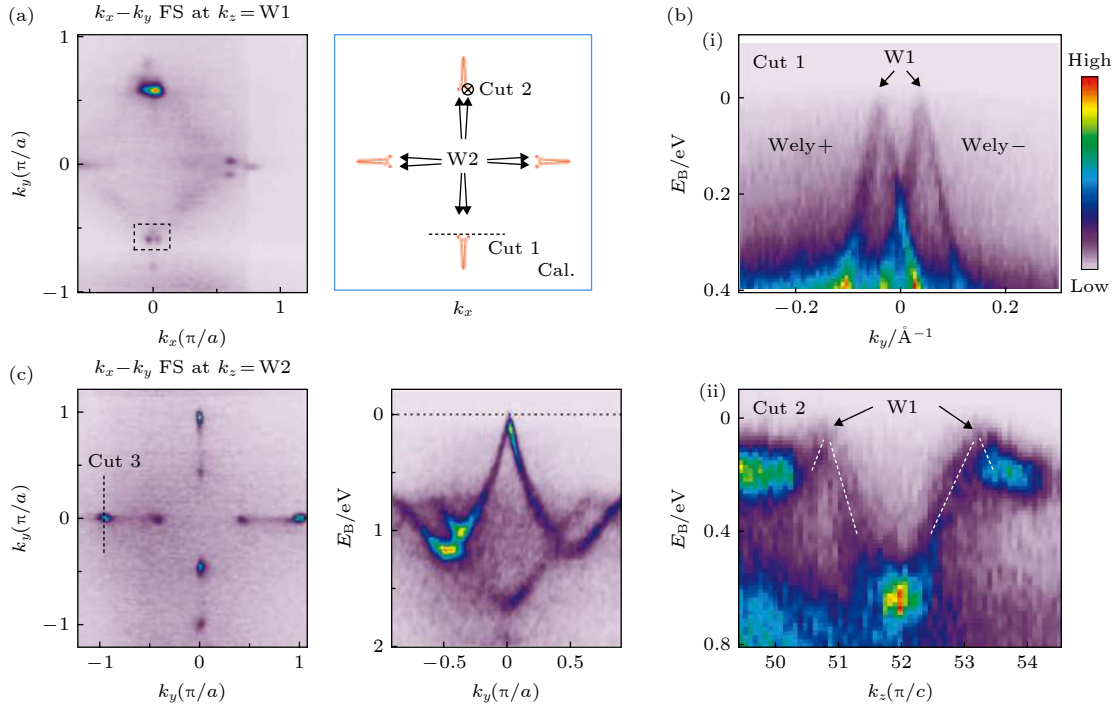


图 8 软 X 射线 ARPES 下 TaAs 中体外尔锥和体外尔点观测图 (a)  $k_z$  穿过体外尔点 W1 时候采得的费米面及其理论简图; (b) (i) 沿图 (a) 中 cut1, cut2 方向切出的角分辨光电子能谱图; (c)  $k_z$  穿过体外尔点 W2 时候采得的费米面及沿 cut3 方向切出的能谱; 过体外尔点 W1, W2 均可看到线性色散外尔锥

Fig. 8. Observation of bulk Weyl cones and Weyl nodes in TaAs using SX-ARPES: (a) Measured and first principles calculated  $k_x$ - $k_y$  Fermi surface maps at the  $k_z$  value that corresponds to the W1 Weyl nodes; (b) ARPES spectra cut along (i) cut1 and (ii) cut2 from Fig. (a); (c) measured  $k_x$ - $k_y$  Fermi surface maps at the  $k_z$  value that corresponds to the W2 Weyl nodes as well as the spectrum cut along cut3. Linearly dispersive Weyl cones of both W1 and W2 can be observed.

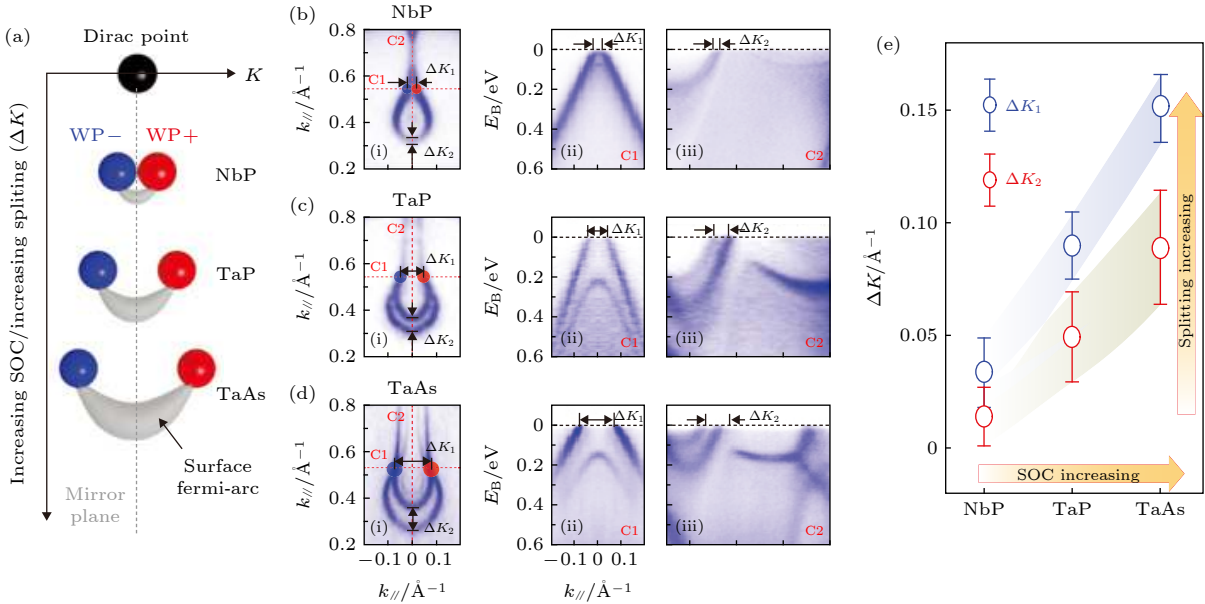


图 9 (a) TaAs 家族中不同自旋轨道耦合强度材料中手性相反外尔点的位置演化图; (b)–(d) 高分辨 ARPES 测量的 NbP, TaP 和 TaAs 的 (i) 勺状费米面以及 (ii) (iii) 沿 C1, C2 红虚线方向的能谱; ( $\Delta K_1$  和  $\Delta K_2$  分布代表外尔点、费米弧的分离程度); (e) 统计得到的  $\Delta K_1$  和  $\Delta K_2$  随三种不同材料自旋轨道耦合强度变化图像

Fig. 9. (a) Illustration of the separation of Weyl points (with opposite chirality, marked as WP+ and WP-) in different materials of TaAs family with increasing spin-orbital coupling effect; (b)–(d) high-resolution ARPES measurements on the (i) spoon-like FS and (ii, iii) associated band dispersions indicated by the red dotted lines for NbP, TaP and TaAs, respectively ( $\Delta K_1$  and  $\Delta K_2$  represent the separation between the Weyl points and Fermi arcs, respectively.); (e) summary of the extracted  $\Delta K_1$  and  $\Delta K_2$  from the three compounds, plotted against the SOC strength.

TaAs 的费米面自旋织构情况. 沿着 C1, C2 方向能够观察到在费米弧不同区域  $P_z$  方向自旋的符号改变 (图 7(h)).

除了 TaAs 之外, 研究者发现同族化合物 TaP<sup>[57]</sup>, NbP<sup>[55,58]</sup>, NbAs<sup>[59]</sup> 均为拓扑外尔半金属, 且成功观测到了体外尔锥及表面态费米弧等特征电子结构. 通过结合理论计算和 ARPES 测量能带结构, 研究者们可以系统研究此家族材料能带结构的系统演化<sup>[55]</sup>. 根据理论预言, 如图 9(a) 中所示, NbP, TaP, TaAs 内原子质量增大时, 晶体中自旋轨道耦合作用增强, 因此具有不同手性成对外尔点的间距以及连接两外尔点的表面态费米弧长度会逐渐增加. 图 9(b)—图 9(d) 中是三种不同材料通过 ARPES 实验测得的能谱, 直观地展示了费米面上外尔点的分离以及费米弧的变化. 其中不同材料中的外尔点的劈裂  $\Delta K_1$  及费米弧与其他表面态的

分裂  $\Delta K_2$  随着 SOC 增强结果总结于图 9(e).

#### 4.1.2 时间反演对称性破缺的外尔半金属

除了空间反演对称性破缺的材料, 拓扑外尔半金属相也能在破坏时间反演对称性的材料中获得. 与空间反演对称性破缺的外尔半金属相比, 时间反演对称性破缺的外尔半金属 (也常被称为磁性外尔半金属) 有其独特的优点. 例如这类材料最少可以只包含一对外尔点 (如图 10(b) 所示), 从而被誉为外尔半金属材料中的“氢原子”. 此简单性更有利于通过调控参数 (磁性、电子关联及拓扑序等) 实现手性反常效应、手性磁效应、显著的反常霍尔效应甚至量子反常霍尔效应等 (如图 10(a)). 同时, 时间反演对称性破缺的外尔半金属也是制备自旋电子器件的重要候选材料之一. 然而, 由于材料制备和实验表征等诸多困难, 在 2011 年被理论预言的磁性外尔半金属材料体系 (如  $\text{Mn}_3\text{Sn}$ <sup>[60]</sup>,  $\text{HgCr}_2\text{Se}_4$ <sup>[51]</sup>

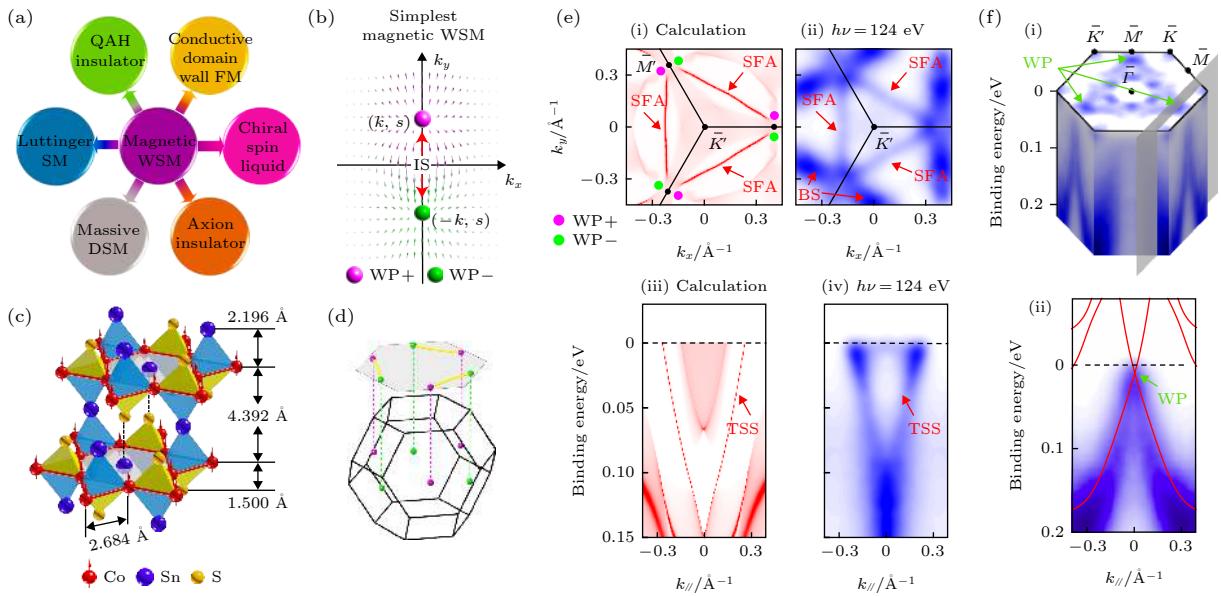


图 10 磁性 Weyl 半金属  $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$ : (a) 磁性 Weyl 半金属及其丰富的近邻量子态; (b) 时间反演破缺使狄拉克费米子 (DP) 劈裂产生一对手性相反的外尔费米子 (WP) 示意图; (c)  $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$  晶体结构及 (d) 动量空间中 (001) 面外尔点和费米弧表面态分布示意图; (e) 费米弧表面态所形成费米面的理论计算 (i) 和实验结果 (ii) 比较以及费米弧表面态能带色散的理论计算 (iii) 和实验结果 (iv) 比较; (f) (i) 费米面上的 Weyl 点 (i) 及其能带 (ii) 的三维演示; (ii) 中过 Weyl 点的线性色散为 (i) 中灰色平面位置所切取, 红色的叠加曲线是理论计算结果

Fig. 10. Magnetic Weyl semimetal  $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$ : (a) Exotic neighboring states of the magnetic WSM can be achieved by tuning parameters such as magnetism, thickness, and electron correlation; (b) illustration of DP splitting (into one pair or two Weyl points) caused by time reversal symmetry broken in simplest magnetic WSMs. Magenta and green color of the Weyl points represent positive (+) and negative (-) chirality, respectively; the arrows illustrate the Berry curvature.  $k$ : momentum;  $s$ : spin; WP: Weyl point; IS: inversion symmetry; (c) crystal structure of  $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$  and (d) schematic of the bulk and surface Brillouin zones along the (001) surface of  $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$ , with the Weyl points marked and connected by SFAs (yellow line segments); (e) comparison of the calculated (i) FS, (iii) band dispersion from both bulk and surface states and the corresponding experimental data of (ii) FS, (iv) band dispersion at 124 eV; (f) (i) 3D ARPES spectra intensity plot measured with Weyl points emerge (marked by green arrows). (ii) The band measured at 10 K, cutting from (i) with grey surface, shows a linear dispersion across the Weyl point, agreeing well with the calculations (red curves overlaid).

等) 至今一直没有被证实. 最近发现的  $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$  材料中 (晶格结构及动量空间布里渊区如图 10(c) 和图 10(d) 所示)<sup>[61,62]</sup>, 低温 (175 K) 发生的铁磁相变形成了时间反演对称性破缺. Liu 等<sup>[61]</sup>利用先进的同步辐射高分辨角分辨光电子能谱手段, 完整观测到了磁性 Weyl 半金属的两大标志性特征: 线性色散的 Weyl 体能带 (图 10(f)) 和连接 Weyl 点的拓扑表面态费米弧 (SFA)(图 10(e)), 从而在实验上首次证实了  $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$  材料确为时间反演对称性破缺的外尔半金属.

## 4.2 第二类外尔半金属

与拓扑狄拉克半金属类似, 当外尔费米子破坏洛伦兹不变性时, 会出现所谓第二类的拓扑外尔半金属<sup>[63]</sup>. 第二类外尔半金属的特征电子结构, 表现为沿某个动量方向显著倾斜的两个相互交叠的外尔锥且外尔锥的两个二重简并点处有受拓扑保护的费米弧表面态相连 (图 11(a)), 此类特征电子结构会带来各向异性磁输运性质如手性异常、反常霍尔效应等一系列奇异物理性质.

首个实验上发现的第二类外尔半金属体系是  $T_d$  相的二碲化钨及二碲化钼 ( $\text{WTe}_2$  和  $\text{MoTe}_2$ )<sup>[64–68]</sup>. 由于其较强的自旋轨道耦合强度,

$\text{MoTe}_2$  体现出了较明显的拓扑电子结构.  $\text{MoTe}_2$  的晶格结构是三层 Te-Mo-Te 原子层堆叠而成的单斜晶胞 (No.31  $Pmn21$  空间群)(如图 11(b)). 根据理论计算 (图 11(c)), 显著倾斜的外尔锥与费米面相切, 形成空穴口袋和电子口袋, 两者相交处形成成对的外尔点 (根据不同的计算假设,  $T_d$ - $\text{MoTe}_2$  中外尔点位置处于费米能级  $E_F$  以上 5<sup>[69]</sup>—55 meV<sup>[70]</sup>, 而外尔点数量为 4 个<sup>[70–74]</sup> 或 8 个<sup>[66–69,75,76]</sup>). 而连接外尔点的表面态费米弧分布在空穴口袋和电子口袋之间的狭小能隙里 (图 10(d)). ARPES 技术直接测得了  $\text{MoTe}_2$  作为第二类外尔半金属的基本特征——显著倾斜的狄拉克锥和拓扑表面态费米弧. 对应于图 11(d) 中理论计算的费米面, 可以分辨图 11(e)(ii) 中电子、空穴口袋的位置并找到体带的表面态、费米弧等迹象. 特别地, 我们注意到, 由于理论预测的外尔点位置处于费米面之上, ARPES 直接在费米面测得的信号来自于费米弧的投影. 清华大学 Wan 等<sup>[77]</sup>利用泵浦-探测 ARPES 技术测量未占据态能带结构, 并成功获得了外尔点和费米弧的直接实验证据 (如图 11(g)). 此外, 图 11(e)(i) 为温度 30 K 下在  $k_y \approx 0.05 \text{ \AA}^{-1}$  处沿  $\bar{\Gamma} - \bar{X}$  方向使用自旋 ARPES 分别对  $P_x, P_y, P_z$  方向进行自旋极化强度测量<sup>[78]</sup>, 能够获取费米弧的自旋结构的

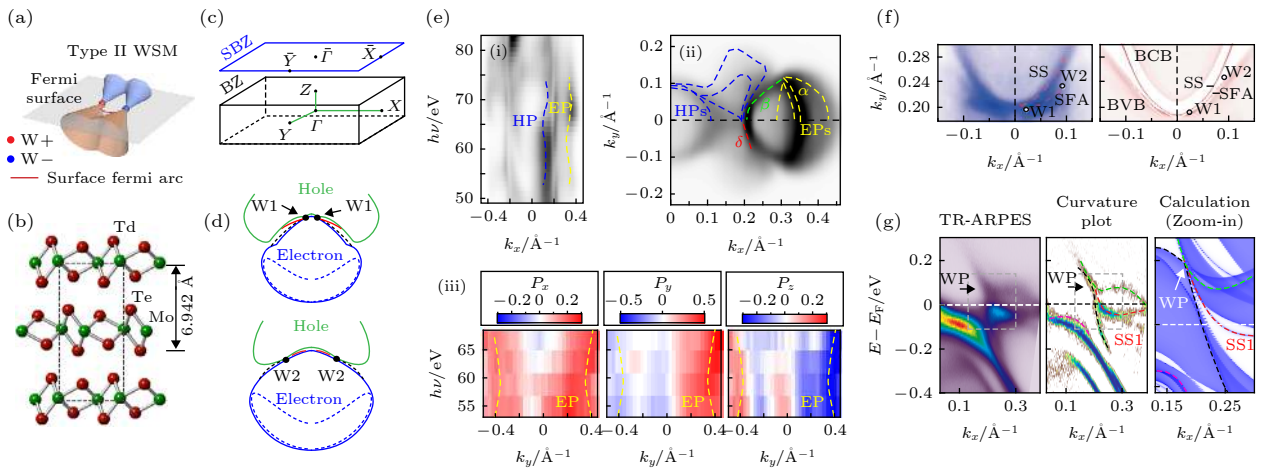


图 11 (a) 第二类外尔费米子在动量空间中示意图; (b)  $T_d$ - $\text{MoTe}_2$  的晶体结构及其 (c) 第一布里渊区示意图; (d) 理论计算的 W1 和 W2 外尔费米子及费米弧在等能面上的位置; (e) (i) 温度 30 K 下沿  $\bar{\Gamma} - \bar{X}$  方向的光能依赖 ARPES 谱以及 (ii)  $k_x-k_y$  面上的  $E_F$  处等能面谱图, (iii) 在  $k_y \approx 0.05 \text{ \AA}^{-1}$  处沿  $P_x, P_y$  和  $P_z$  方向的光能依赖自旋极化情况 (表示电子口袋和空穴口袋的 EPs 和 HPs 以及费米弧等由  $\alpha, \beta, \gamma, \delta$  等虚线指出); (f)  $k_x-k_y$  面内 W1 和 W2 外尔点附近的实验费米面图像及理论计算能带投影图; (g) 利用泵浦-探测技术测得的过外尔点 ARPES 谱图及其对应的理论计算结果

Fig. 11. (a) Schematic illustration of type-II Weyl Fermions in the momentum space; (b) crystal structure and (c) 1<sup>st</sup> Brillouin zone of  $T_d$ - $\text{MoTe}_2$ ; (d) calculated W1 and W2 Weyl Fermions and Fermi arcs on CECs; (e) (i) photon-energy dependent ARPES data ( $T = 30 \text{ K}$ ) plot along  $\bar{\Gamma} - \bar{X}$  at  $E_F$  as well as Fermi surface in the  $k_x-k_y$  plane, together with (iii) spin polarization measured at  $k_y \approx 0.05 \text{ \AA}^{-1}$  with photon-energy variation for  $P_x, P_y$  and  $P_z$ , respectively. EPs, HPs are short for electron pockets and hole pockets, small Fermi arcs are pointed out by  $\alpha, \beta, \gamma, \delta$  dashed lines; (f) measured and calculated Fermi surface around W1 and W2 in  $k_x-k_y$  plane; (g) pump-probe ARPES spectrum cut through WP as well as the corresponding band structure calculation.

信息(图 11(e)(iii)).

同时, 研究者们通过理论研究发现, 通过样品参数调制(晶格常数、掺杂等)能够诱导出第二类外尔半金属的拓扑相变, 使得外尔点的个数, 费米弧的连接方式等发生变化, 导致材料出现不同的拓扑性质. 例如, 由于 W 和 Mo 原子的不同原子质量及自旋轨道耦合作用强度, 研究者们通过在  $W_xMo_{1-x}Te_2$ <sup>[79]</sup> 中改变 W 和 Mo 在晶格中的占比来获得不同晶格常数和费米弧拓扑性质的第二类外尔半金属<sup>[70,80]</sup>. 继  $WTe_2/MoTe_2$ <sup>[81-83]</sup> 之后, 已证实的第二类外尔半金属还有  $LaAlGe$ <sup>[84]</sup>,  $Ta/NbIrTe_4$ <sup>[85-87]</sup> 等. 第二类外尔半金属相较于已发现的第一类外尔半金属而言有更少的外尔点数量和费米面上非零的电子态密度, 这将会为研究反常霍尔效应等新奇的电子效应提供很好的平台.

## 5 新型费米子的角分辨光电子能谱研究

### 5.1 多重简并外尔半金属

对于拓扑半金属, 除狄拉克半金属之外, 晶体

对称性能够保护多重对称性, 如三重、六重简并费米子可以在有半整数角动量费米子激发的空间群中找到, 受非点式空间群对称性或者时间空间反演对称性保护<sup>[88-92]</sup>. 此种不连续的分立空间对称性导致的新型费米子突破了人们对基本粒子的认识. 除了对基础物理解理解的突破, 具有多种简并度的费米子有着独特的表面态和输运特性<sup>[91-93]</sup>. 在理论预言的若干种材料中, 第一性原理的计算结果预言在几种碳化钨结构材料的电子能带结构中具备三重简并点<sup>[94,95]</sup>. 中国科学院物理研究所的 Lv 等<sup>[96]</sup>对上述体系材料中的 MoP 这一材料进行 ARPES 电子结构表征, 验证了 MoP 的电子结构中具备三重简并的费米子存在.

MoP 晶体处于 No.187  $P6/mm$  空间群, 具有  $C_{3z}$  旋转对称性, 以及  $M_y$  和  $M_z$  镜像对称性(图 12(a) 和图 12(b)). MoP 的能带计算显示, 在  $\Gamma-A$  方向上, 存在多重能带简并情况, 图 12(d) 和图 12(e) 绘制出无自旋轨道耦合以及有自旋轨道耦合这两种情况下三重简并点所在的位置. 当无自旋轨道耦合时,  $\Gamma-A$  方向上存在一个三重简并点, 由一个非简并的  $d_{z^2}$  轨道能带和一个二重简并的  $e_g(d_{xy}$  和

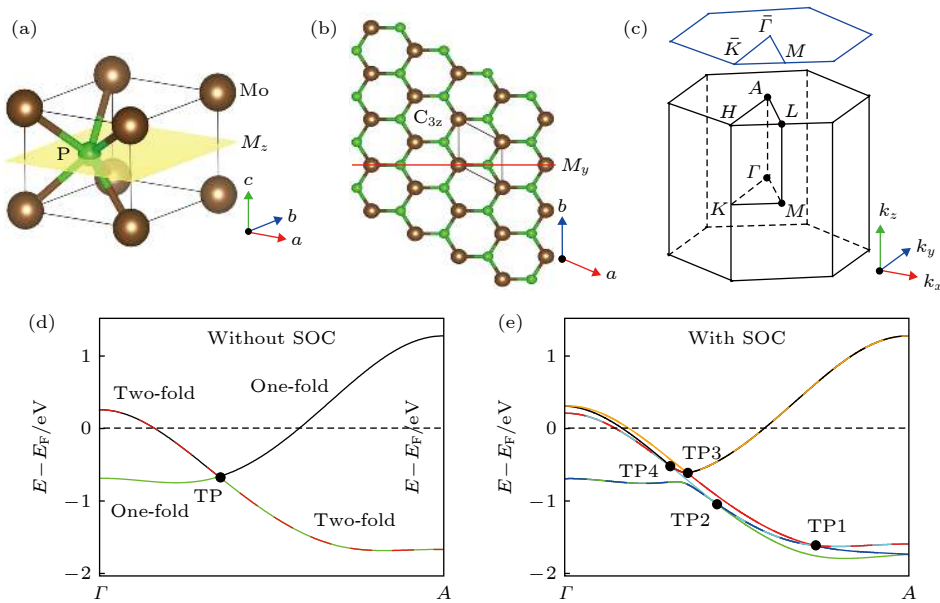


图 12 MoP 的晶体结构及动量空间  $\Gamma-A$  方向能带结构图示 (a) MoP 的三维晶体结构及 (b)  $M_z$  方向(黄色面)俯视图; (c) 体布里渊区和投影的 (001) 表面布里渊区; (d) 不考虑及 (e) 考虑自旋轨道耦合时沿  $\Gamma-A$  方向的理论能带结构. 交叉点处的黑点表示三重简并点. 颜色混合标注的曲线表示双重简并能带, 纯色曲线表示非简并能带

Fig. 12. Crystal structure and band structure of MoP along the  $\Gamma-A$  line in the momentum space: (a) Three-dimensional crystal structure of MoP and (b) the top view of the lattice showing the  $C_{3z}$  rotation symmetry with respect to molybdenum (brown spheres) or phosphorous (green spheres) and the  $M_y$  mirror plane (horizontal red line); (c) bulk Brillouin zone and the projected (001) surface Brillouin zone; (d) (e) calculated band structures along  $\Gamma-A$  (d) without and (e) with SOC. The black spots at the crossing points indicate the triply degenerate points. The curves with mixed colors represent doubly degenerate bands, curves with pure color represent non-degenerate bands.

$d_{x^2-y^2}$ ) 自旋轨道组合形成, 如图 12(e). 计入自旋轨道耦合效应后, 由于  $M_y$  镜像对称性的存在,  $\Gamma-A$  方向上的能带重构为两个非简并的能带和两条二重简并的能带, 并最终形成四个三重简并点. 所有的三重简并点受  $C_{3Z}$  旋转对称性保护.

对 MoP 的 ARPES 结果显示, 在布里渊区中, 沿 C2 的高对称 A 点附近的能谱上可以观察到两个二重简并能带, 如图 13(b) 所示. 沿  $A-\Gamma$  方向演化时, 两条能带中处于上部的能带保留其二重简并的特性, 而处于能量下部的 W 形状能带则劈裂

成了上下两支非简并的能带, 如图 13(c) 所示. 其中下部的一条非简并上支能带沿着  $A-L$  方向与电子口袋状二重简并能带接触, 从而形成一个三重简并点 (如图 13(a) 和图 13(e) 中 TP1), 位于  $\Gamma-A$  方向上  $k_z = 0.75\pi/c$  处.

### 5.2 新型手性费米子

手性一词指一个物体不能与其镜像相重合的现象, 相对论中的手性讨论了自旋与动量的关系, 如外尔费米子就是一种具有手性的粒子. 如固体中

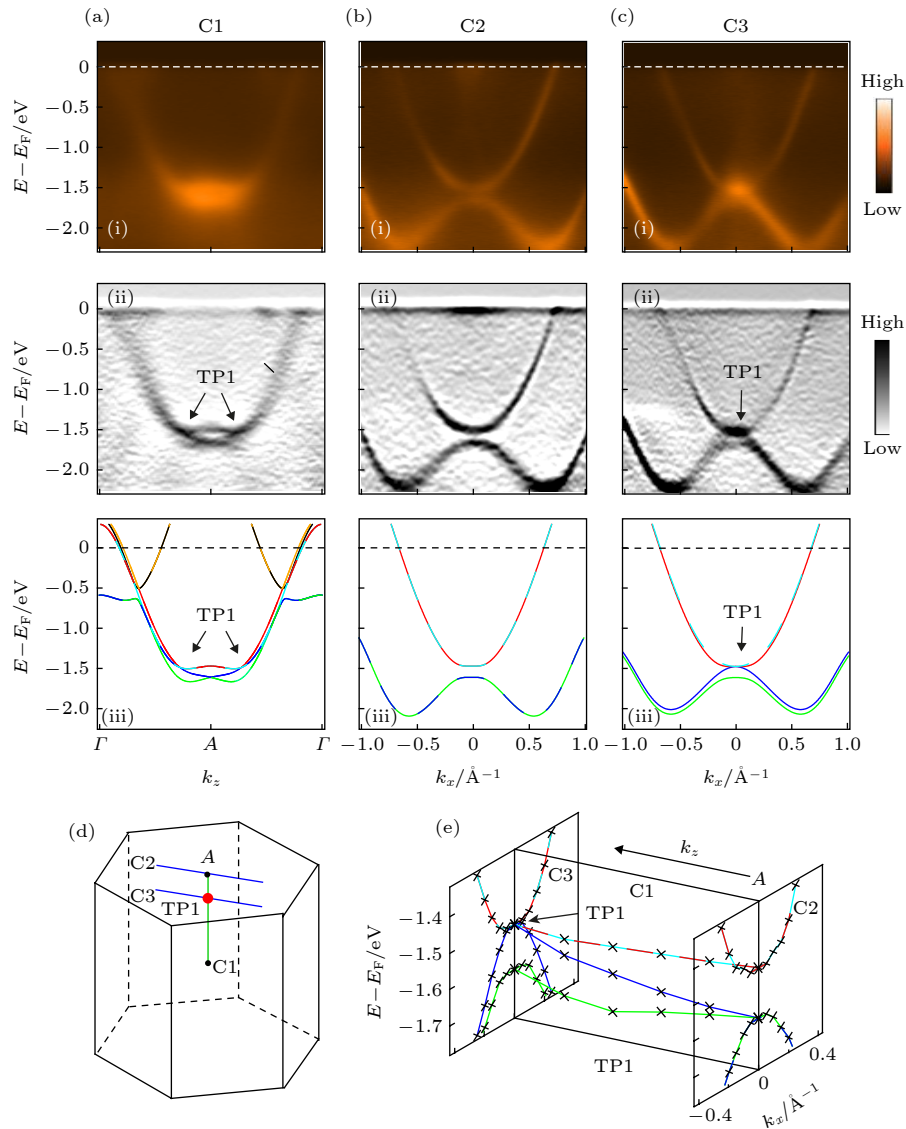


图 13 拓扑简并点 TP1 附近的电子结构 (a)–(c) 沿 C1, C2, C3 方向 (i)–(iii) 的 ARPES 及其能带曲率谱图与理论计算能带色散; (d) C1, C2, C3 方向在体布里渊区中的位置示意图; (e) 沿 C1 演化的 TP1 点附近能带分布三维色散图. C1 能谱由 (100) 解理面采得而 C2, C3 由 (001) 解理面采得

Fig. 13. Electronic structure near TP1. (a)–(c) (i) ARPES, (ii) curvature intensity plots and (iii) calculated band structure along (a) C1, (b) C2 and (c) C3; (C1, C2, C3 are blue and green lines indicated in (d)) (e) 3D plot of the band dispersions along C1 near TP1. Spectrum along C1 is recorded on the (100) cleavage surface; those along C2 and C3 are obtained on the (001) cleavage surface.

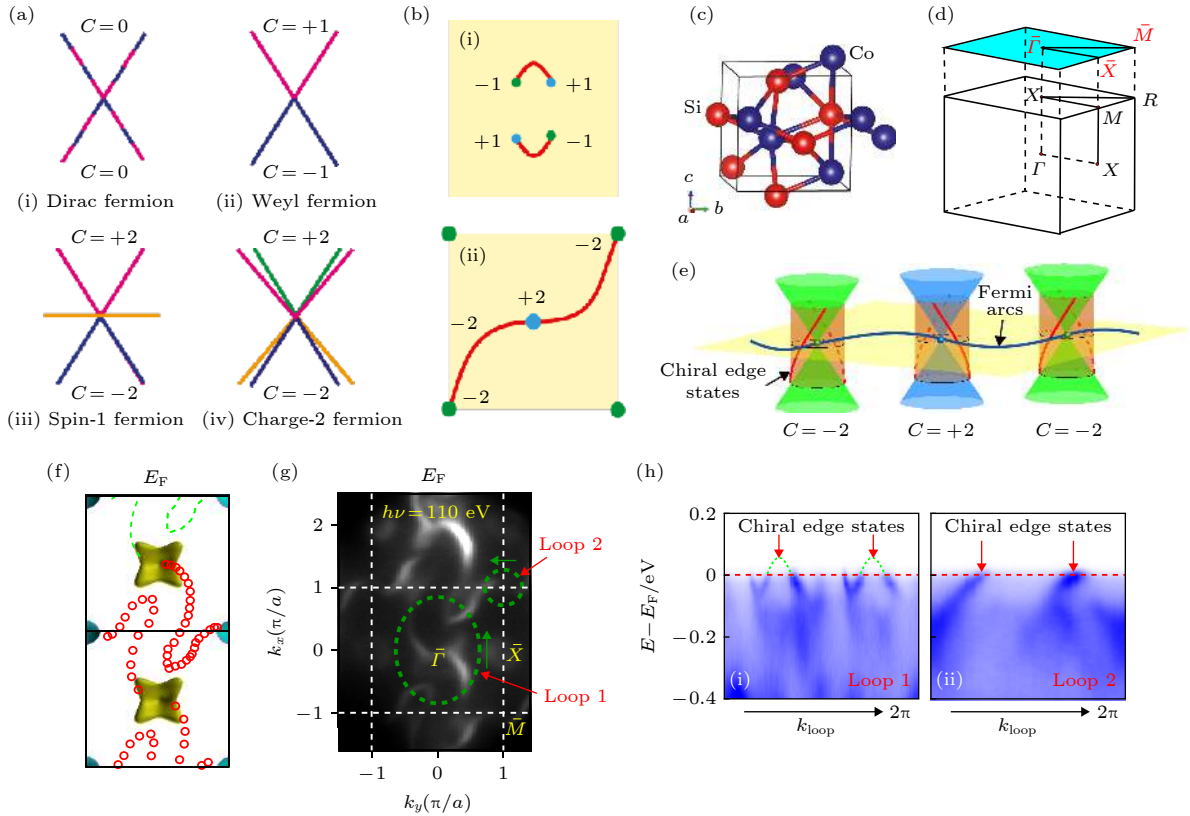


图 14 (a) 四种费米子的能带示意图; (b) 外尔半金属(上)与 CoSi(下)中连接手性相反费米子投影的费米弧图示; (c) CoSi 的晶体结构及 (d) 第一布里渊区示意图; (e) 三维动量空间中手性边界态与费米弧示意图; (f), (g) 理论计算和实验得出的 CoSi 费米面结果; (h) 沿图 (g) 中 Loop1 和 Loop2 所示切出的  $k_{//}$  面内能谱

Fig. 14. (a) Schematics of the band structures of a Weyl Fermion, a Dirac Fermion, a spin-1 Fermion and a charge-2 Fermion; (b) schematics of the Fermi arcs connecting the projections of Fermions with opposite chiralities for Weyl semimetals (up) and CoSi (down); (c) crystal structure and (d) 1<sup>st</sup> Brillouin zone of CoSi; (e) diagram of chiral edge states and Fermi arcs in 3D momentum space; (f), (g) theoretical and experimental results of Fermi surface in CoSi; (h) in-plane (along  $k_{//}$ ) spectra cut along Loop1 and Loop2 in Fig. (g).

包围能带简并点的费米面具有非零的 Chern 数, 则该简并点具有手性, 而此时费米面上的低能准粒子激发是具有磁荷的手性费米子. 手性相反的简并点在表面上的投影被费米弧表面态所连接. 如狄拉克点和三重简并点都可以看成是一对手性相反的外尔点的叠加, 但可以通过外加条件破缺对称性 (如外加磁场), 退简并成手性的外尔费米子.

发现外尔费米子之外的新型手性费米子具有重要的科学意义. 2019 年科学家们在手性晶体 CoSi<sup>[97,98]</sup>, AlPt<sup>[99]</sup>, PdBiSe<sup>[100]</sup> 等体系中预言并发现了若干非常规的新型手性费米子, 以 CoSi 为例, 在其体态布里渊区的中心  $\Gamma$  和顶角  $R$  点分别存在三重和四重能带简并点. 与 MoP, WC 中的三重简并点和 Na<sub>3</sub>Bi, Cd<sub>3</sub>As<sub>2</sub> 中的四重简并的狄拉克点不同, 它们是陈数  $C = \pm 2$  的手性的简并点, 而费米面上的低能准粒子激发是磁荷为 2 的手性费米

子, 分别被命名为 spin-1 (图 14(a)(iii)) 和 charge-2 费米子 (图 14(a)(iv)). 由于 CoSi 中一个布里渊区仅容纳一对新型的手性费米子, 且两种手性相反的新型费米子间相隔极远, 横跨一整个布里渊区 (如图 14(b)(ii)). spin-1 和 charge-2 费米子在 (001) 面上的投影由穿过整个表面布里渊区的费米弧相连接 (图 14(e) 中蓝线), 这给出了 CoSi 中存在新型手性费米子的确定证据. 与 CoSi 类似的材料还有 RhSi<sup>[98]</sup>, AlPt<sup>[99]</sup> 等, 其中 AlPt 为具有磁荷为 4 的手性费米子, 处于布里渊区中的高对称点, 分别被命名为 spin-1 和 spin-3/2.

## 6 拓扑节线半金属

### 6.1 拓扑节线半金属

在三维动量空间中, 两条能带的交叉闭合不仅

可能形成独立的零维交叉点(如狄拉克点、外尔点); 还有可能形成连续的一维曲线, 这样的半金属材料被称为节线半金属<sup>[101]</sup>(如图 15(a)). 在这类材料中, 节线的存在是受对称性保护的, 一旦对称性破缺, 则能带交叉的节点线处会完全打开能隙或者闭合的节线变成几个独立的能带筒并点.

节线半金属最初是在 2011 年由 Burkov 等<sup>[102]</sup>首次提出的, 随后研究者们通过第一性原理计算预言了一大批候选材料, 如  $MSiS$  ( $M = Zr$  或  $Hf$ )、 $Cu_2Si$  薄膜<sup>[103]</sup>、 $MgSrSi$  型材料<sup>[104]</sup>等. 截至目前, 已被实验研究证实是节线半金属的有  $PbTaSe_2$ <sup>[105]</sup>、 $PtSn_4$ <sup>[106-107]</sup>、 $MSiS$  ( $M = Zr, Hf$ ) 型材料<sup>[108-111]</sup>,

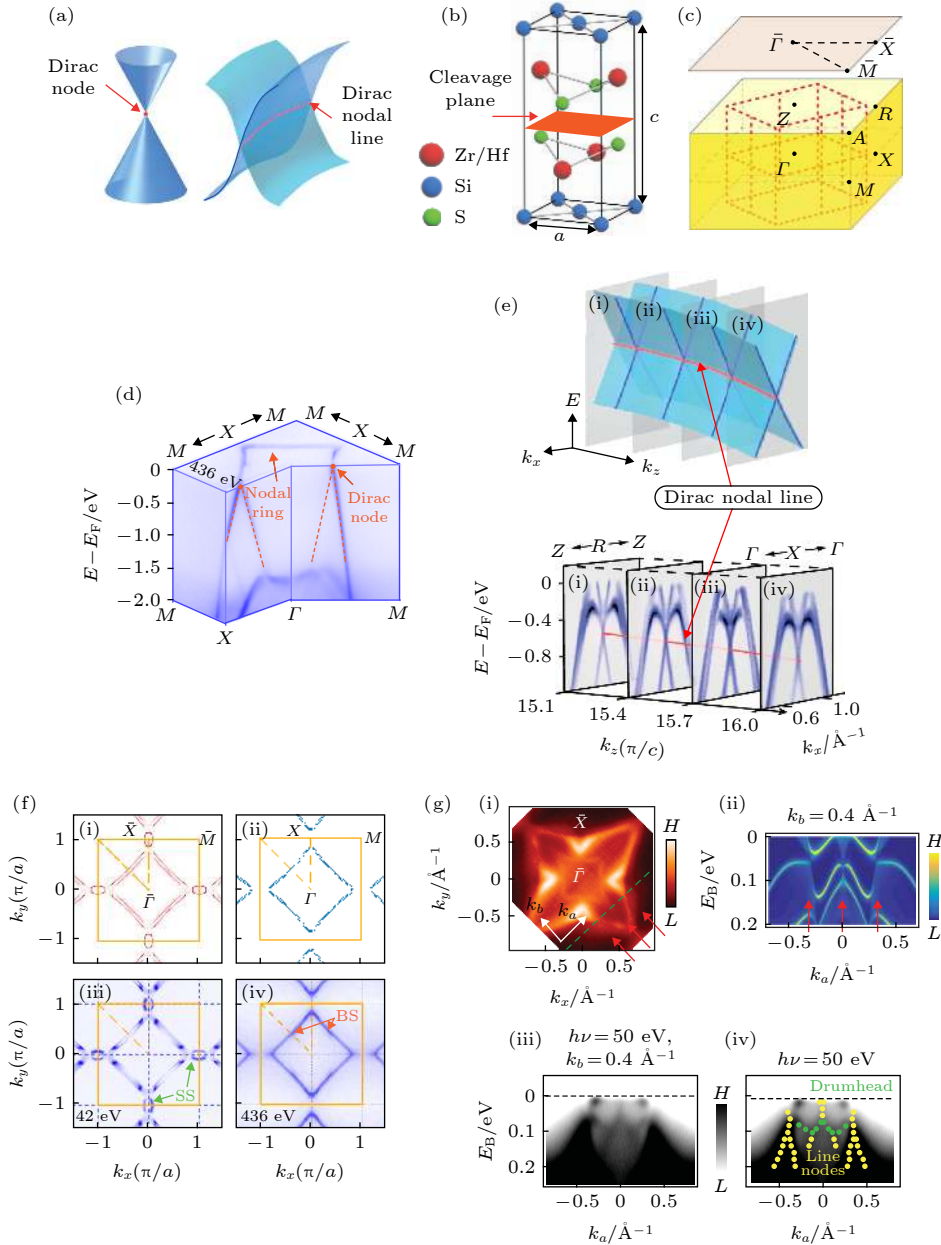


图 15 (a) 狄拉克点与节点线图示; (b)  $MSiS$  ( $M = Zr/Hf$ ) 材料的晶体结构和 (c) 第一布里渊区 (及 (001) 表面布里渊区) 示意图; (d)  $ZrSiS$  中光能  $436$  eV 下 ( $k_z = 0$ ) 测得的三维能谱图, 展示了的节点环能带结构; (e) 沿  $k_z$  方向演化的狄拉克节点线图示及对应的从  $\Gamma$ - $X$ - $\Gamma$  到  $Z$ - $R$ - $Z$  的 ARPES 能谱; (f) 理论计算和实验得出的  $ZrSiS$  费米面 (i) (iii) 表面态及 (ii) (iv) 纯体态结果; (g)  $Co_2MnGa$  中的鼓面表面态图示

Fig. 15. (a) Schematic illustration of Dirac node and Dirac nodal line in the momentum space; (b) crystal structure and (c) 1<sup>st</sup> Brillouin zone (together with surface BZ) of  $MSiS$  ( $M = Zr/Hf$ ); (d) 3D intensity plot of spectra measured in  $ZrSiS$  with  $h\nu = 436$  eV, showing the band structure of the nodal ring when  $k_z = 0$ ; (e) schematic of the band structure hosting a Dirac nodal line along  $k_z$  direction as well as corresponding ARPES spectra from  $\Gamma$ - $X$ - $\Gamma$  to  $Z$ - $R$ - $Z$ ; (f) calculated and measured Fermi surface of  $ZrSiS$  with surface and bulk states respectively; (g) schematic of topological drumhead surface states in  $Co_2MnGa$ .



IrO<sub>2</sub><sup>[112]</sup>, InBi<sup>[113]</sup> 等材料, 甚至在铍、镁等碱土金属单质<sup>[114]</sup>中, 也发现了与理论结果相符合的狄拉克节线量子态. 其中, MSiS 系列的材料能带结构较为理想, 费米面附近节线、表面态差别明显<sup>[115]</sup>, 下面以它为例子来介绍节线半金属.

MSiS 型晶体为四方结构 (No.129 *P4/nmm* 空间群), 自然解理面为 (001) 面, 实验测得的动量空间中能带色散如图 15(d) 所示. 理论预言在高对称 *R—X* 及 *M—A* 方向上存在一类节线, 在 *Γ—M* 方向附近存在另一类节线. 第一类节线受非点式空间群对称性保护, 在自旋轨道耦合作用下稳定, 但其具有平庸的拓扑数, 而第二类节线结构具有非平庸拓扑数, 但其在自旋轨道耦合作用下能打开能隙. 通过光能依赖的 ARPES 实验, 能够测得第一类节线结构, 如图 15(e) 所示, *Γ—X—Γ* 方向上在费米面下约 0.6 eV 处产生狄拉克点, 并且随着 *R—X* 方向  $k_z$  变化, 能带筒并处的狄拉克点始终存在并在能量方向上下浮动, 构成了一条典型的节线. 而第二类节线由于处于费米面附近, 其整体结构较难测量完成. 此外 2019 年物理所的 Fu 等<sup>[116]</sup>通过软 X 射线 ARPES 测量空气中解理的 ZrSiS 样品得到了与图 16(f)(ii) 纯体带计算相符的干净体态费米面 (图 16(f)(iv)), 在体态中偏离高对称的方向时 (如图 16(a) 中分别偏离 *X—M*, *L—H*,

*R—A* 方向的 C4, C5, C6), 节点线会出现劈裂并沿所在面的法线方向 (如图 16(b) 中的  $k_x$  方向) 形成狄拉克锥型的能带交叠 (如图 16(b), 图 16(c) 和图 16(d)), 这就在布里渊区的边界  $k_x=\pi$  或  $k_y=\pi$  处 (例如 *R—X—M—A* 面) 构成了二维的节点面结构<sup>[116]</sup>.

拓扑节线半金属另一个重要特征拓扑电子态是围绕着拓扑非平庸的节线结构会产生所谓的鼓面表面态, 最近在铁磁性节线半金属 Co<sub>2</sub>MnGa 中被实验观察得到<sup>[117]</sup>(如图 15(g)). 在表面平带中引入电子关联效应或超导配对, 还有望实现分数拓扑态、高温超导等新奇物态.

除了上文所说的节点线、节点环 (如图 17(a)(i)) 之外, 多个节点环在动量空间中还可能相互交叠, 形成相互嵌套的节点环 (图 17(a)(ii))、节点链结构 (图 17(a)(iii)), 甚至是更加复杂的节点结构 (图 17(a)(iv)) 等. 其中在节点链半金属中, 由于节点线之间出现了简并点, 电子结构可能出现比四重简并的狄拉克点更高简并度的节点 (例如图 17(b) 中 J 点). 较为典型的节点链半金属是 AlB<sub>2</sub><sup>[118]</sup> 型结构的 TiB<sub>2</sub><sup>[119,120]</sup>, 其晶体为中心对称的六方结构 (No.191 *P6/mmm* 空间群, 如图 17(d)), 第一布里渊区如图 17(b) 所示, 动量空间中除了 *A* 点附近的费米面有类似电子和空穴口袋的结构之外, 绝大部

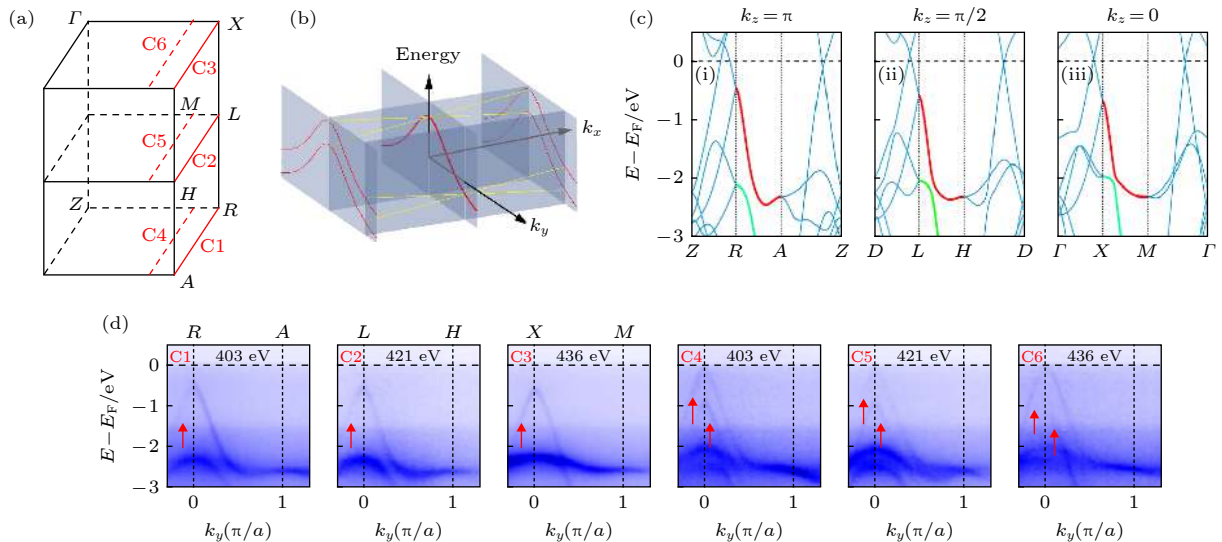


图 16 (a) ZrSiS 的布里渊区局部放大图; (b) 节面附近任意  $k_x-k_y$  面上的节线能带劈裂图示; (c) 理论计算的 *R—A*, *L—H*, *X—M* 方向上的节点线能带色散; (d) 沿图 (a) 中 C1—C6 方向的 ARPES 能谱, 红色箭头所指为劈裂前后的对应能带

Fig. 16. (a) Zoomed-in Brillouin zone of ZrSiS; (b) Schematic plot of the band splitting of nodal line in an arbitrary  $k_x-k_y$  plane near the nodal surface; (c) calculated nodal line dispersion along *R—A*, *L—H* and *X—M* direction; (d) ARPES spectra along C1—C6 cuts in Fig. (a), with nodal lines before and after splitting pointed out by red arrows.

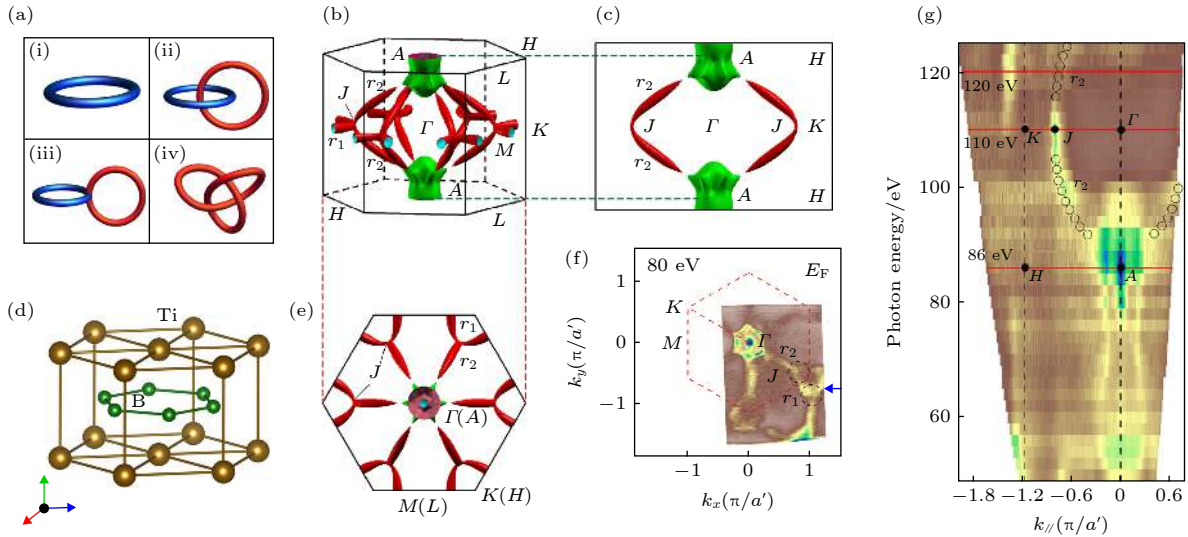


图 17 (a) 四种节线形成的拓扑结构; (b) 三维动量空间中  $\text{TiB}_2$  的理论计算体态费米面图示; (c) 节点链结构在  $A-\Gamma-J$  面上的投影; (d)  $\text{TiB}_2$  的晶格结构示意图; (e) 节点链结构在  $\Gamma-M-K$  面上的俯视投影; (f) ARPES 实验 80 eV 下测得的费米面图; (g) 光能依赖 ARPES 实验测得的节点链结构

Fig. 17. (a) Schematics of four topological configurations formed by nodal lines; (b) calculated bulk FSs in the 3D BZ and the (c) projected calculation on the  $A-\Gamma-J$  surface, respectively; (d) crystal structure of  $\text{TiB}_2$ ; (e) top view projection on  $\Gamma-M-K$  surface of the nodal chain calculation. (f) Fermi surface measured using ARPES at 80 eV; (g) nodal chain measured using  $h\nu$ -dependent ARPES experiment.

分的费米面都全是由节点环构成的. 根据第一性原理计算, 布里渊区中存在两个节点链的镜像对称平面:  $\Gamma-K-M$  面和  $\Gamma-A-H$  面 (图 17(c)), 节点环与能带在  $\Gamma-K-M$  面上投影如图 17(e) 所示,  $r_1$  节点环围绕  $K$  点与其他布里渊区中的  $r_1$  节点环相连接构成闭合图像,  $r_2$  节点环与  $r_1$  节点环在  $J$  点处相交. 图 17(f) 为通过 ARPES 实验在 80 eV 入射光条件下测得的费米面, 可以明显看到围绕  $K$  点的  $r_1$  节点环的存在, 同时也能清晰地看到沿  $\Gamma-K$  方向  $r_2$  节点环在费米面上绕  $\Gamma$  点的放射状投影, 两节点环的交叠处  $J$  点由黑色虚线圈出. 由于  $r_2$  节点环嵌在  $\Gamma-A-H$  面中, 实验中通过改变不同的入射光子能量 (光能从 50 eV 变至 124 eV), 可以获得如图 17(g) 中的囊括了不止一个布里渊区的  $\Gamma-A-H$  费米面, 图中纵轴的光能对应  $k_z$  动量方向的演化, 与图 17(c) 的理论计算对比, 可以证实空心圈圈出的路径即为穿过  $J$  点的  $r_2$  节点环在动量空间中的分布色散.

由于晶体中宇称-时间对称性和镜像反射对称性的保护, 节点链的存在与否受自旋轨道耦合作用影响几乎可以忽略, 所以除  $\text{TiB}_2$  之外,  $\text{ZrB}_2$ <sup>[121]</sup> 等相似结构的二硼化物中也发现了类似的节点链结构. 这类材料中的节点线和动量空间其他能带没有

互相干涉, 因此可以为进一步研究狄拉克节点线费米子提供一个理想的研究平台.

## 7 拓扑半金属的调控

在拓扑半金属材料的研究中, 一个非常重要的方向就是如何人工调控拓扑电子结构 (改变非平庸的拓扑电子结构甚至实现拓扑转变) 并实现基于拓扑电子结构的器件应用. 目前报道的调控材料拓扑性的尝试有: 体掺杂<sup>[55]</sup>, 表面掺杂<sup>[122]</sup>, 改变维度 (从体块材料到单层的演化)<sup>[123]</sup>, 电流调控<sup>[124]</sup> 等. 下面简述两个实例.

### 7.1 掺杂调控外尔半金属的拓扑电子结构

在外尔半金属的掺杂调控研究中, 以体掺杂的形式改变体系的自旋-轨道耦合强度, 能用来改变成对外尔点在动量空间中的分离程度及费米弧的长短<sup>[55,80]</sup>; 以表面掺杂的方式改变表面化学环境被报道能操纵费米弧并实现拓扑 Lifshitz 转变<sup>[122]</sup>.

如前所述, 通过改变化学配比方式, 能够调节 TaAs 家族和  $\text{Mo}_x\text{W}_{1-x}\text{Te}_2$  家族的外尔点分布、间距及费米弧的长度及连接方式等重要拓扑结构. 此外用钾原子修饰表面以改变表面的化学环境, 被证

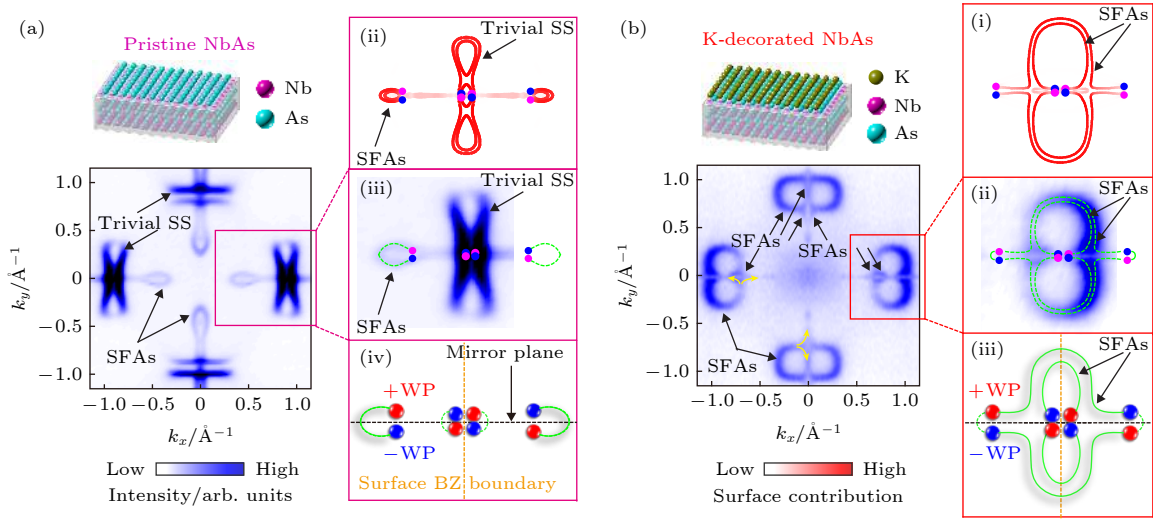


图 18 原位表面钾原子修饰诱发的拓扑 Lifshitz 转变 (a) 和 (b) 分别是解离的 NbAs 的 (001) 面和钾原子修饰的电子能带结构. (i) 到 (iv) 分别是实验测得的费米面、 $\bar{X}$  点附近费米面的能带计算和实验测量、费米弧连接成对外尔点的示意图. Trivial SS 指平庸的表面态, SFAs 指费米弧表面态, WP 指外尔点.

Fig. 18. Topological Lifshitz transition induced by in-situ potassium decoration: (a) and (b) are band structures of the pristine and in-situ potassium-decorated NbAs (001) surface, respectively. (i) - (iv): Measured Fermi surface, calculated and measured Fermi surface patch around  $\bar{X}$  point, schematic illustration of the Fermi arc connectivity to projections of pairs of Weyl points. Trivial SS is short for trivial surface states, SFAs is short for surface Fermi arcs, and WP is short for Weyl point.

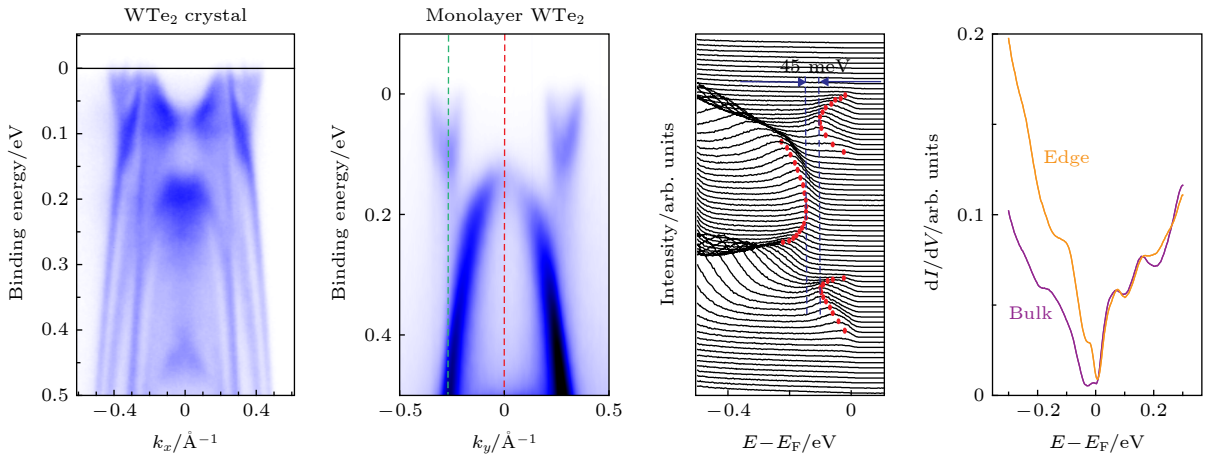


图 19 单层  $\text{WTe}_2$  的量子自旋霍尔绝缘体态 (a)  $\text{WTe}_2$  单晶的沿着  $\bar{Y}-\bar{G}-\bar{Y}$  方向的能带色散; (b)  $\text{WTe}_2$  单层薄膜的能带色散. 导带和价带形成 45 meV 的带隙; (c) 在单层薄膜上的边界和体态的隧道扫描显微镜微分电导谱的对比: 边界上出现了边界态 Fig. 19. (a) Band dispersion of  $\text{WTe}_2$  crystals along  $\bar{Y}-\bar{G}-\bar{Y}$  direction, showing multiple band crossings at  $E_F$ ; (b) band dispersion of monolayer  $\text{WTe}_2$  film (A bandgap of 45 meV is clearly revealed); (c) representative STM  $dI/dV$  spectra taken at the edge (orange) and in the bulk (purple), respectively.

明能操纵第一类外尔半金属 NbAs 的费米弧表面态 [122,125]. 图 18(a) 展示了 NbAs 的 (001) 解离面 (砷截止面) 的费米面, 拓扑表面态贡献的费米弧位于勺子顶端, 而勺子其余部分则为平庸表面态. 然而, 表面钾原子修饰后, 费米面由勺子-领结的结构变成了“8”字形结构, 并且该“8”字形纯粹地由两个长的费米弧构成的, 平庸的表面态不复存在 (图 18(b)). 更重要的是, 通过钾修饰后, 费米弧连接外尔点的方

式发生了根本改变 (对比图 18(a)(iv) 和 图 18(b)(iv)): 修饰之后的费米弧跨过布里渊区边界连接了新的一对外尔点, 从而发生了拓扑 Lifshitz 转变 [122]. 这为将来基于拓扑半金属的器件开发及应用提供一个具有可操作性的重要方向.

## 7.2 维度调制的拓扑相变

维度也是调控体系能带的一个重要参量. 如前

所述, 三维体块的  $\text{WTe}_2$  被理论和实验证实为第二类外尔半金属 [63,81,82]. 当层状的  $\text{WTe}_2$  被制备成为二维单层薄膜后, 能带结构则变为具有 45 meV 的能隙的间接带隙半导体 (图 19(b)), 且 STM 研究显示在边界处有拓扑非平庸边界态 (图 19(c)) [123,126]. 进一步, 输运研究在单层  $\text{WTe}_2$  测到了量子化电导平台 [127], 这些证据共同证明单层  $\text{WTe}_2$  是本征二维拓扑绝缘体 (量子自旋霍尔效应绝缘体). 因此, 我们通过改变  $\text{WTe}_2$  系统的维度在同一种材料中实现了拓扑相转变.

## 8 结 论

本文展示了多种类型拓扑半金属电子结构的角分辨光电子研究成果. 在过去几年中, 在拓扑半金属的研究领域中有大量新奇的发现与突破性进展, 理论分析、材料生长和实验表征等方面皆涌现了许多具有代表性的工作. 目前, 对一系列新型费米子拓扑半金属的研究正不断深入且不断出现新的突破性进展, 而除了开拓新的研究方向之外, 也有部分研究者致力于探测如烧绿石铋氧化物 [11]、尖晶石 ( $\text{HgCr}_2\text{Se}_4$  [51]) 等早已预言的材料的电子结构. 基于现阶段已有的成果, 研究者们希望在日后能够更全面系统地探测拓扑半金属材料的物性并探索其器件化的应用前景, 例如基于拓扑半金属的自旋电子学器件、光电器件等. 与此同时, 角分辨光电子能谱技术也正在日新月异地发展中, 例如空间分辨 ARPES 技术、时间分辨 ARPES 技术及极低温 ARPES 技术等, 新技术的发展能够拓展探索物理参数的边界, 提高物理量分辨率, 增进数据采集效率等等, 从而将为拓扑材料领域的实验探索提供更好的工具.

## 参考文献

[1] Klitzing K V, Dorda G, Popper M, et al. 1980 *Phys. Rev. Lett.* **45** 494  
 [2] Thouless D J, et al. 1982 *Phys. Rev. Lett.* **49** 405  
 [3] Tusi D C, Stormer H L, Gossard A C, et al. 1982 *Phys. Rev. Lett.* **48** 1559  
 [4] Wen X G 1989 *Phys. Rev. B* **40** 7387  
 [5] Wen X G 1990 *Int. J. Mod. Phys. B* **4** 239  
 [6] Bernevig B A, Hughes T L, Zhang S C, et al. 2006 *Science* **314** 1757  
 [7] Fu L, Kane C L 2007 *Phys. Rev. B* **76** 045302  
 [8] Moore J E, Balents L 2007 *Phys. Rev. B* **75** 121306  
 [9] Hsieh D, Qian D, Wray L, et al. 2008 *Nature* **452** 970

[10] Chen Y L, Analytis J G, Chu J H, et al. 2009 *Science* **325** 178  
 [11] Wan X G, Turner A M, Vishwanath A, et al. 2011 *Phys. Rev. B* **83** 205101  
 [12] Wang Z J, Sun Y, Chen X Q, et al. 2012 *Phys. Rev. B* **85** 195320  
 [13] Young S M, Zaheer S, Teo J C Y, et al. 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 140405  
 [14] Dirac P A M 1928 *Proc. R. Soc. A* **117** 610  
 [15] Weyl H 1929 *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.* **15** 323  
 [16] Borisenko S, Gibson Q, Evtushinsky D, et al. 2014 *Phys. Rev. Lett.* **113** 027603  
 [17] Liu Z K, Jiang J, Zhou B, et al. 2014 *Nat. Mater.* **13** 677  
 [18] Liu Z K, Zhou B, Zhang Y, et al. 2014 *Science* **343** 864  
 [19] Neupane M, Xu S Y, Sankar R, et al. 2014 *Nat. Commun.* **5** 3786  
 [20] Xu S Y, Belopolski I, Alidoust N, et al. 2015 *Science* **349** 6248  
 [21] Damascelli A, Hussain Z, Shen Z X 2003 *Rev. Mod. Phys.* **75** 473  
 [22] Chen Y L 2012 *Front. Phys.* **7** 175  
 [23] Penn D R 1987 *Phys. Rev. B* **35** 482  
 [24] Powell C J, Jablonski A, Tilinin I S, et al. 1999 *J. Electron. Spectrosc. Relat. Phenom.* 98-99  
 [25] Clark D T, Thomas H R 1977 *J. Polym. Sci., Part A: Polym. Chem.* **15** 2843  
 [26] Nicholson A J C 1970 *Appl. Opt.* **9** 1155  
 [27] Elder F R, Gurewitsch A M, Langmuir R V, et al. 1947 *Phys. Rev.* **71** 829  
 [28] Huffman R E, Tanaka Y, Larrabee J C 1963 *Appl. Opt.* **2** 617  
 [29] Carmignani N 2016 *Touschek Lifetime Studies and Optimization of the European Synchrotron Radiation Facility* 1  
 [30] Xu S Y, Liu C, Kushwaha S K, et al. 2015 *Science* **347** 294  
 [31] Liang A J, Chen C Y, Wang Z J, et al. 2016 *Chin. Phys. B* **25** 077101  
 [32] Yi H M, Wang Z J, Chen C Y, et al. 2014 *Sci. Rep.* **4** 6106  
 [33] Wang Z J, Weng H M, Wu Q S, et al. 2013 *Phys. Rev. B* **88** 125427  
 [34] Wu M, Zheng G L, Chu W W, et al. 2018 *Phys. Rev. B* **98** 161110  
 [35] Zhang C, Zhang Y, Yuan X, et al. 2019 *Nature* **565** 331  
 [36] Zhang K N, Yan M Z, Zhang H X, et al. 2017 *Phys. Rev. B* **96** 125102  
 [37] Li Y W, Xia Y Y Y, Ekahana S A, et al. 2017 *Phys. Rev. Mater.* **1** 074202  
 [38] Yan M Z, Huang H Q, Zhang K N, et al. 2017 *Nat. Commun.* **8** 257  
 [39] Bahramy M S, Clark O J, Yang B J, et al. 2017 *Nat. Mater.* **17** 21  
 [40] Noh H J, Jeong J, Cho E J, et al. 2017 *Phys. Rev. Lett.* **119** 016401  
 [41] Fei F C, Bo X Y, Wang R, et al. 2017 *Phys. Rev. B* **96** 041201  
 [42] Xiao R C, Gong P L, Wu Q S, et al. 2017 *Phys. Rev. B* **96** 075101  
 [43] Tang P Z, Zhou Q, Xu G, et al. 2016 *Nat. Phys.* **12** 1100  
 [44] Emmanouilidou E, Cao H B, Tang P Z, et al. 2017 *Phys. Rev. B* **96** 224405  
 [45] Kang M G, Ye L D, Fang S A, et al. 2019 arXiv: 1906.02167  
 [46] Lin Z Y, Wang C Z, Wang P D, et al. 2019 arXiv: 1906.05755  
 [47] Soh J R, Juan F, Vergniory M G, et al. 2019 arXiv: 1901.10022 v  
 [48] Ma J Z, Nie S M, Yi C J, et al. 2019 *Sci. Adv.* **5** eaaw4718

- [49] Su H, Gong B C, Shi W J, et al. 2019 arXiv: 1903.12532
- [50] Hua G Y, Nie S M, Song Z D, et al. 2018 *Phys. Rev. B* **98** 201116
- [51] Xu G, Weng H M, Wang Z J, et al. 2011 *Phys. Rev. Lett.* **107** 186806
- [52] Lv B Q, Weng H M, Fu B B, et al. 2015 *Phys. Rev. X* **5** 031013
- [53] Lv B Q, et al. 2015 *Phys. Rev. Lett.* **115** 217601; 2015 *Nat. Phys.* **11** 724
- [54] Yang L X, Liu Z K, Sun Y, et al. 2015 *Nat. Phys.* **11** 728
- [55] Liu Z K, Yang L X, Sun Y, et al. 2016 *Nat. Mater.* **15** 27
- [56] Weng H M, Fang C, Fang Z, et al. 2015 *Phys. Rev. X* **5** 011029
- [57] Xu S Y, Belopolski I, Sanchez D S, et al. 2015 *Sci. Adv.* **1** e1501092
- [58] Xu S Y, Belopolski I, Sanchez D S, et al. 2015 arXiv: 1509.07465
- [59] Xu S Y, Alidoust N, Belopolski I, et al. 2015 *Nat. Phys.* **11** 748
- [60] Kuroda K, Tomita T, Suzuki M T, et al. 2017 *Nat. Mater.* **16** 1090
- [61] Liu D F, Liang A J, Liu E K, et al. 2019 *Science* **365** 1282
- [62] Morali Noam, Batabyal Rajib, Nag P K, et al. 2019 *Science* **365** 1286
- [63] Soluyanov A A, Gresch D, Wang Z J, et al. 2015 *Nature* **527** 495
- [64] Sun Y, Wu S C, Ali M N, et al. 2015 *Phys. Rev. B* **92** 161107
- [65] Wang Z J, Gresch D, Soluyanov A A, et al. 2016 *Phys. Rev. Lett.* **117** 056805
- [66] Tamai A, Wu Q S, Cucchi I, et al. 2016 *Phys. Rev. X* **6** 031021
- [67] Deng K, Wan G L, Deng P, et al. 2016 *Nat. Phys.* **12** 1105
- [68] Jiang J, Liu Z K, Sun Y, et al. 2017 *Nat. Commun.* **8** 13973
- [69] Huang L, McCormick T M, Ochi M, et al. 2016 *Nat. Mater.* **15** 1155
- [70] Rüßmann P, Weber A P, Glott F, et al. 2018 *Phys. Rev. B* **97** 075106
- [71] Wang Z J, Alexandradinata A, Robert J C 2016 *Nature* **532** 189
- [72] Xu N, Wang Z J, Weber A P, et al. 2016 arXiv: 1604.02116
- [73] Berger A N, Andrade E, Kerelsky A, et al. 2018 *npj Quantum Mater.* **3** 2
- [74] Yao M Y, Xu N, Wu Q S, et al. 2019 *Phys. Rev. Lett.* **122** 176402
- [75] Liang A J, Huang J W, Nie S M, et al. 2016 arXiv: 1604.01706
- [76] Sakano M, Bahramy M S, Tsuji H, et al. 2017 *Phys. Rev. B* **95** 121101
- [77] Wan G L, Yao W, Zhang K N, et al. 2017 arXiv: 1710.00350
- [78] Weber A P, Rüßmann P, Xu N, et al. 2018 *Phys. Rev. Lett.* **121** 156401
- [79] Chang T R, Xu S Y, Chang G Q, et al. 2016 *Nat. Commun.* **7** 10639
- [80] Belopolski I, Xu S Y, Ishida Y, et al. 2016 *Phys. Rev. B* **94** 085127
- [81] Pletikosić I, Ali M N, Fedorov A V, et al. 2014 *Phys. Rev. Lett.* **113** 216601
- [82] Jiang J, Tang F, Pan X C, et al. 2015 *Phys. Rev. Lett.* **115** 166601
- [83] Wu Y, Jo N H, Ochi M, et al. 2015 *Phys. Rev. Lett.* **115** 166602
- [84] Xu S Y, Alidoust N, Chang G Q, et al. 2017 *Sci. Adv.* **3** e1603266
- [85] Belopolski I, Yu P, Sanchez D S, et al. 2017 *Nat. Commun.* **8** 942
- [86] Koepernik K, Kasinathan D, Efremov D V, et al. 2016 *Phys. Rev. B* **93** 201101
- [87] Haubold E, Koepernik K, Efremov D, et al. 2017 *Phys. Rev. B* **95** 241108
- [88] Heikkilä T T, Volovik G E 2015 *New J. Phys.* **17** 093019
- [89] Winkler G W, Wu Q S, Troyer M, et al. 2016 *Phys. Rev. Lett.* **117** 076403
- [90] Hyart T, Heikkilä T T 2016 *Phys. Rev. B* **93** 235147
- [91] Weng H M, Fang C, Fang Z, et al. 2016 *Phys. Rev. B* **93** 241202
- [92] Bradlyn B, Cano J, Wang Z J, et al. 2016 *Science* **353** 558
- [93] Zhu Z M, Winkler G W, Wu Q S, et al. 2016 *Phys. Rev. X* **6** 031003
- [94] Weng H M, Fang C, Fang Z, et al. 2016 *Phys. Rev. B* **94** 165201
- [95] Chang G Q, Xu S Y, Huang S M, et al. 2017 *Sci. Rep.* **7** 1688
- [96] Lv B Q, Feng Z L, Xu Q N, et al. 2017 *Nature* **546** 627
- [97] Rao Z C, Li H, Zhang T T, et al. 2019 *Nature* **567** 496
- [98] Sanchez D S, Belopolski I, Cochran T A, et al. 2019 *Nature* **567** 500
- [99] Schröter N B M, Pei D, Vergniory M G, et al. 2019 *Nat. Phys.* **15** 759
- [100] Lv B Q, Feng Z L, Zhao J Z, et al. 2019 *Phys. Rev. B* **99** 241104
- [101] Fang C, Weng H M, Dai X, et al. 2016 *Chin. Phys. B* **25** 117106
- [102] Burkov A A, Hook M D, Balents L, et al. 2011 *Phys. Rev. B* **84** 235126
- [103] Feng B J, Fu B T, Kasamatsu S, et al. 2017 *Nat. Commun.* **8** 1007
- [104] Lian J L, Yu L X, Liang Q F, et al. 2019 *npj Comput. Mater.* **10** 1
- [105] Bian G, Chang T R, Sankar R, et al. 2016 *Nat. Commun.* **7** 10556
- [106] Wu Y, Wang L L, Mun E, et al. 2016 *Nat. Phys.* **12** 667
- [107] Wu Y, Jo N H, Wang L L, et al. 2019 *Phys. Rev. B* **99** 161113(R)
- [108] Neupane M, Belopolski I, Hosen M M, et al. 2016 *Phys. Rev. B* **93** 201104
- [109] Takane D, Wang Z W, Souma S, et al. 2016 *Phys. Rev. B* **94** 121108
- [110] Chen C, Xu X, Jiang J, et al. 2017 *Phys. Rev. B* **95** 125126
- [111] Hosen M M, Dimitri K, Belopolski I, et al. 2017 *Phys. Rev. B* **95** 161101
- [112] Xu X, Jiang J, Shi W J, et al. 2019 *Phys. Rev. B* **99** 195106
- [113] Ekahana S A, Wu S C, Jiang J, et al. 2017 *New J. Phys.* **19** 065007
- [114] Li R H, Ma H, Cheng X Y, et al. 2016 *Phys. Rev. Lett.* **117** 096401
- [115] Xu Q N, Song Z D, Nie S M, et al. 2015 *Phys. Rev. B* **92** 205310
- [116] Fu B B, Yi C J, Zhang T T, et al. 2019 *Sci. Adv.* **645** eaa6459
- [117] Belopolski I, Manna K, Sanchez D S, et al. 2019 *Science* **365** 1278
- [118] Takane D, Souma S, Nakayama K, et al. 2018 *Phys. Rev. B* **98** 041105(R)
- [119] Liu Z H, Lou R, Guo P J, et al. 2018 *Phys. Rev. X* **8** 031044
- [120] Yi C J, Lv B Q, Wu Q S, et al. 2018 *Phys. Rev. B* **97** 201107(R)
- [121] Lou R, Guo P J, Li M, et al. 2018 *npj Quantum Mater.* **43** 1
- [122] Yang H F, Yang L X, Liu Z K, et al. 2019 *Nat. Commun.* **10** 3478
- [123] Tang S J, Zhang C F, Wong D, et al. 2017 *Nat. Phys.* **13** 684

- [124] Šmejkal L, Železný J, Sinova J, et al. 2017 *Phys. Rev. Lett.* **118** 106402 115428  
 [126] Qian X F, Liu J W, Fu L, et al. 2014 *Science* **346** 1344  
 [125] Sun Yan, Wu S C, Yan B H, et al. 2015 *Phys. Rev. B* **92** [127] Wu S F, Fatemi V, Gibson Q D, et al. 2018 *Science* **359** 76

## SPECIAL TOPIC—The frontiers and applications of topological physics

# Progress of ARPES study on topological semimetals\*

Deng Tao<sup>1)2)3)</sup> Yang Hai-Feng<sup>3)</sup> Zhang Jing<sup>3)</sup> Li Yi-Wei<sup>4)</sup>

Yang Le-Xian<sup>5)</sup> Liu Zhong-Kai<sup>3)†</sup> Chen Yu-Lin<sup>3)4)5)‡</sup>

1) (*CAS Center for Excellence in Superconducting Electronics (CENSE), State Key Laboratory of Functional Materials for Informatics, Shanghai Institute of Microsystem and Information Technology (SIMIT), Chinese Academy of Sciences, Shanghai 200050, China*)

2) (*University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China*)

3) (*School of Physical Science and Technology, ShanghaiTech University, ShanghaiTech Laboratory for Topological Physics, Shanghai 201210, China*)

4) (*Department of Physics, University of Oxford, Oxford OX1 3PU, United Kingdom*)

5) (*Department of Physics, Tsinghua University, Beijing 100084, China*)

( Received 10 October 2019; revised manuscript received 11 November 2019 )

### Abstract

Topological semimetal, known as a type of topological quantum materials without energy gap, has attracted lots of research interests due to its unique physical properties such as novel quasiparticles, giant magnetoresistance and large carrier mobility. Topological semimetal can be further classified into topological Dirac semimetal, topological Weyl semimetal, topological nodal-line semimetal and topological semimetals with “new fermions”. The high-resolution angle-resolved photoemission spectroscopy (ARPES) has emerged as a powerful experimental technique to directly visualize the electronic structure and identify the characteristic topological electronic states in topological semimetals. Here we would briefly introduce the ARPES technique and review some of the recent progress of ARPES study on the electronic structures of typical topological semimetals. We would focus mostly on the physics origin and ARPES signature of topological electronic structures and hope the readers would find it interesting and useful in the understanding of this material class which both is important in physics and has promising application potentials.

**Keywords:** topological semimetal, electronic structure, quantum materials, angle-resolved photoemission spectroscopy

**PACS:** 71.55.Ak, 71.20.-b, 73.20.-r, 79.60.-i

**DOI:** 10.7498/aps.68.20191544

\* Project supported by the National Key Technologies Research and Development program of the Ministry of Science and Technology of China (Grant Nos.2017YFA0305400, 2017YFA0304600) and the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11774190, 11674229).

† Corresponding author. E-mail: liuzhk@shanghaitech.edu.cn

‡ Corresponding author. E-mail: yulin.chen@physics.ox.ac.uk