先进表征与测量——让动量空间拓扑态 绽放光彩

王一博 刘恩克[†] (中国科学院物理研究所 磁学国家重点实验室 北京 100190)

Advanced characterization and measurement ——revealing the brilliance of momentum-space topological states

WANG Yi-Bo LIU En-Ke[†] (State Key Laboratory of Magnetism, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China)

摘 要 起源于20世纪的拓扑能带理论开启了凝聚态物理的新一春。在拓扑绝缘 体以及拓扑半金属材料中,存在着各种体态和表面态拓扑电子态。验证拓扑能带的存在及 其主导的物理现象,离不开先进的表征技术与测量手段,也离不开这些测试技术的极低 温、超高压、强磁场等极端环境。对拓扑材料的表征包括直接对材料能带进行观测的谱学 方法和基于拓扑准粒子、贝里曲率等所开展的电、热输运行为研究。基于这些表征方法与 测量手段,科学家揭示了许多拓扑材料中独有的物理现象,例如量子化的霍尔效应、拓扑 表面态、狄拉克/外尔费米子、手征反常导致的负磁电阻、巨反常霍尔效应、自旋一轨道 极化子等。文章通过介绍拓扑材料的多种先进表征测量手段,展现其在凝聚态物理研究中 的独特魅力。通过展示拓扑电子物态丰富多彩的形态和行为,促进拓扑物理的快速发展。

关键词 拓扑材料,拓扑物态表征,拓扑物性测量,贝里曲率,大科学装置

The emergence of topological band theory in the last century ushered in a Abstract new era for condensed matter physics. In topological insulators and topological semimetals, these materials host a wide range of distinct surface and bulk topological electronic states that exhibit unique properties. Validating the existence of these bands and their associated physical phenomena relies on advanced characterization and measurement techniques, as well as extreme experimental environments such as ultralow temperature, ultrahigh pressure, and strong magnetic field. Characterization approaches include spectroscopic methods that directly observe the band structures, as well as transport studies investigating electrical and thermal behavior stemming from the topological quasiparticles and Berry curvature. Since the 1980s, numerous unique physical phenomena have been uncovered through these techniques, including quantum Hall effect, topological surface states, Dirac/Weyl fermion, negative magnetoresistance induced by chiral anomaly, giant anomalous Hall effect and spin-orbital polaron. The article introduces various advanced characterization techniques for topological materials, highlighting their unique charm in the field of condensed matter physics. By presenting the diverse forms and behaviors of topological electronic states, it promotes the rapid advancement of topological physics.

Keywords topological materials, topological state characterization, topological property measurement, Berry curvature, large-scale scientific facilities

2025-02-14 收到

^{*} 科技部重点研发计划(批准号: 2022YFA1403400)资助项目

[†] email: ekliu@iphy.ac.cn DOI:10.7693/wl20250502 CSTR:32040.14.wl20250502

1 引言

拓扑概念在凝聚态物理学中的引入始于 1980年,当时David Thouless开始探讨拓扑在实际材料中的应用。1982年,Thouless、Kohmoto、 Nightingale和den Njis四位科学家共同发表了一篇 关于拓扑不变量的论文^[1]。这一拓扑不变量,称 为TKNN数,标志着拓扑材料研究的崭新开端^[1]。 1983年,贝里(Michael Berry)发表了关于绝热近 似中几何相位的研究,这一研究揭示了拓扑物理 中的另一重要概念——贝里相位^[2]。进入新世纪 后,对拓扑材料的研究逐渐兴起,从拓扑绝缘体 到拓扑半金属,拓扑材料的新奇行为被广为研究。

基于电子—电子相互作用及晶格的周期性, 布洛赫提出了能带理论,这是材料动量空间电子 结构的理论基础^[3]。拓扑材料中存在独特的线性 色散电子结构,因此导致其具有非同寻常的宏观 物性。在这一研究进程中,具有特定物理原理的 新奇测试技术,一直是推动和揭示动量空间新 奇物性、物态的重要力量。作为拓扑材料实验学 研究的开端,借助极低温(小干1K),强磁场(大 于10 T)的大科学装置,通过测量拓扑材料的电输 运性质,研究人员发现了许多显著的基于拓扑理 论的量子化效应,例如量子(自旋、反常)霍尔效 应^[4-6]。近年来,研究人员利用角分辨光电子能谱 (ARPES)以及扫描隧道显微镜(STM),得到了许多 新奇拓扑材料的动量空间拓扑态的直接证据,证 实了拓扑材料中线性色散的存在[7-9]。进一步,利 用金刚石对顶砧生成超高压的力学手段,可以使

材料发生磁性、能带结构以及晶 体结构的相变,从而使材料发生 结构或磁性导致的拓扑相变。这 些先进表征技术为新兴拓扑材料 的发展提供了强大的动力,让拓 扑材料能够走进未来应用的大门。

从拓扑概念被引入凝聚态物 理学开始,经过对拓扑相关量子 化效应的研究,再到具体拓扑材 料的深入探索,人们对拓扑材料的实验测试技术 水平在逐渐提升和发展。没有这些先进测试技术, 拓扑物态只能是被关在动量空间中的一只金凤凰。 拓扑不变量为拓扑材料的研究打开了大门,而开 拓这一研究领域的,则是随后的理论与实验物理 学家们。

2 拓扑材料及其拓扑特征

拓扑材料的开端始于拓扑绝缘体。拓扑绝缘体在能隙中存在线性色散的能带,为无耗散的表面态,如图1(a)所示。这意味着虽然其内部是绝缘体,但电子在表面可以没有任何阻碍地运动,被张首晟称为"电子高速公路"。L. Molenkamp及其团队通过实验,提供了HgTe/CdTe量子阱中存在二维拓扑绝缘体态的强有力证据^[5]。随后, 沈志勋课题组发表了关于Bi₂Se₃的ARPES实验结果,证明了这两种材料具有拓扑绝缘体的特征^[7]。

拓扑绝缘体的拓扑性质主要集中在表面态, 而拓扑半金属则具有体态的拓扑性质,体态中存 在线性色散的能带和简并的节点。如果费米能级 附近仅存在线性交叉的能带,那么电子在体态的 移动将是低耗散的。存在正反两种手性的电子态, 是拓扑半金属的另外一个重要特征。这两种手性 的电子态,在动量空间的同一点存在,形成狄拉 克费米子,如图1(b)所示。Na₃Bi和Cd₃As₂是三维 狄拉克半金属的代表性体系^[8,10]。陈宇林课题组 通过ARPES实验,成功验证了这两种材料的狄拉 克半金属特性。而在外尔半金属中,两种手性的 电子态得以分离,从而实现稳定的拓扑半金属态,



如图 1(c)所示。外尔半金属态主要通过空间反演 破缺或者时间反演破缺来实现,非磁性 TaAs 是 非中心对称的空间反演破缺的外尔半金属,磁性 Co₃Sn₂S₂是中心对称、时间反演破缺的外尔半金 属。相比狄拉克半金属,外尔半金属中还存在拓 扑表面态。作为外尔半金属的独特特征,丁洪课 题组^[10]、Hasan课题组^[11]和陈宇林课题组^[12]几乎同 时通过角分辨光电子能谱观测到了 TaAs 能带结构 中的外尔点及其表面上的费米弧。陈宇林课题 组^[13]和 Haim 课题组^[14],观察到磁性 Co₃Sn₂S₂中 (001)表面的费米弧和体态外尔点。对这些拓扑态 的精准确定,离不开越来越先进的物态表征手段 与物性测量方法。

拓扑材料经过实验验证后展现出了优异的物 理性质。在拓扑绝缘体中,由于背散射通道禁闭 的独特特性,其表面态具有超高的迁移率。进一 步的研究发现,在本征磁性拓扑绝缘体 MnBi₂Te₄ 中存在量子反常霍尔效应^[15]。在外尔半金属WTe, 中,得益于独特的线性色散拓扑能带,输运测试 展现出高达1300000%的巨磁电阻,在60T的磁 场下仍未达到饱和状态^[16]。同样地,WTe2中的线 性色散拓扑能带赋予材料极高的迁移率, 使其成 为高效的自旋源材料^[17],具有优异的自旋电荷转 换效率。在外尔半金属CoS,中,基于线性外尔能 带所诱导的大贝里曲率,在9T磁场下观测到了 高达900%且未饱和的线性正磁电阻[18]。此外,在 磁性外尔半金属Co₃Sn₂S₂中发现了由拓扑能带引 起的大贝里曲率和显著的反常霍尔效应及霍尔角。 其中,反常霍尔角从常规磁性材料中的3%大幅 提升至20%^[19],通过掺杂Fe元素后进一步提高到 33%^[20],而在薄膜状态下更是达到了46%^[21]。在 外尔半金属EuB₆中,由于倾斜外尔锥的存在,在 材料内部产生了奇对称的面内霍尔输运行为[22]。 在拓扑节线半金属Co₂MnGa中,拓扑能带的出 现使得材料产生了6 µV/K 的大能斯特系数^[23]。此 外,还有一些被预测的新效应:如外尔费米子与 非共线磁序(例如磁畴壁)之间的相互作用、磁畴 壁磁电阻现象,以及拓扑扭矩效应等。这些丰富 物性是拓扑材料走向应用的重要基础,为拓扑自

旋电子学中的存储、逻辑和传感应用奠定了重要 基础。对其性能的提升和新效应的发现,是当前 重要的研究内容。

3 拓扑材料的物态表征

拓扑材料的物态表征技术,包括磁性、电输运、热输运,还包括谱学技术,如ARPES、 STM、红外光谱等,还可以利用力学手段调控高 压下的拓扑物态、利用非弹性中子散射研究磁激 发行为等。

3.1 磁性

磁序作为破缺时间反演对称性的一个重要 手段,对拓扑材料有着十分深远的影响。而时 间反演对称性的破缺作为凝聚态物理中一种重 要的对称性破缺,为拓扑材料带来了更为丰富的 电输运、热输运、光学等磁相关物理和物性,为 拓扑物态的调控引入了外磁场自由度,也为磁性 拓扑材料在磁电子学方面的应用打开了突破口。 借助于超导量子干涉仪(superconducting quantum interference device, SQUID)、磁力矩等磁测量技 术,在常规磁场或强磁场中进行测量,可以得到 拓扑材料的居里温度、交流磁化率、饱和磁化强 度、饱和场和矫顽场等信息。磁性拓扑材料的磁 结构和磁激发则可通过弹性和非弹性中子衍射谱 来表征研究。

3.1.1 德哈斯—范阿尔芬效应

德哈斯—范阿尔芬效应(de Haas—van Alphen effect)是磁性物态中非常重要的量子振荡行为, 是研究费米面几何形状的有效手段^[24, 25]。当狄 拉克或外尔点在费米能级附近时,拓扑半金属一 般拥有较小的费米面。对拓扑材料进行磁化率测 量,在较低的磁场下体系的费米面会发生朗道能 级量子化现象,就会产生德哈斯—范阿尔芬效 应。进一步地,通过变温和转角测量,可以进一 步得到有效质量、费米速度、贝里相位和费米面 形状等信息。这一点也在诸多实验中得到体现, 例如笼目材料 Fe₃Sn₂,通过德哈斯一范阿尔芬效应,可以观测到从狄拉克点衍生出来的准二维费米面^[26]。

3.1.2 磁光克尔效应

磁光克尔效应主要描述的是在磁化表面反射 前后线偏振光转化为椭圆偏振光的现象,用来探 测材料中时间反演对称性破缺的信息(图2(a))。光 与自旋轨道耦合再加上能带劈裂,会导致对左、 右旋的偏振光吸收不同。与反常霍尔效应相似, 磁光克尔效应与体系的贝里曲率密切相关:材 料的磁光克尔转角与材料随频率变化的反常霍 尔角成正比,而材料的反常霍尔角可以受到拓 扑效应的增强[27]。磁光克尔效应只能出现在时间 反演对称破缺的材料中,但不限于铁磁材料:在 非共线六角反铁磁外尔材料 Mn₃Sn 中,研究者发 现了20 mdeg的磁光克尔转角[28]。寻找具有大磁 光克尔角的材料是磁性拓扑材料研究的一个重要 内容。磁光克尔效应已被广泛应用于磁有序、磁 畴演化、磁各向异性等问题的研究中,并在磁存 储技术中拥有良好的应用前景。

3.2 电输运

电输运是拓扑材料最主流的研究手段。在拓 扑材料中,能带的线性色散往往可以带来低有效 质量的狄拉克费米子,从而产生高迁移率的输运 行为。因此,纵向电阻与横向电阻往往随温度或 磁场产生一些独特行为,这是由线性色散拓扑能 带所导致的。

3.2.1 弱反局域化行为

弱(反)局域化是无序金属中量子干涉导致的 输运现象。如果量子干涉的修正为正,即产生弱 反局域化现象,如果为负,则产生弱局域化现象, 而将弱(反)局域化与拓扑物理联系到一起的是贝 里相位。对于无质量的外尔费米子行为,计算得 到其量子干涉相位为π,从无质量的费米子行为 逐渐地过渡到有质量的费米子行为,相应的量子 干涉相位还要再添加一项π×Δ/2E_F(Δ为打开的能 隙, *E*_F为费米能)^[29]。随着磁性元素掺杂,能隙打 开,材料的电导逐渐从弱反局域化转为弱局域化 行为,这一点已经在磁性元素 Cr掺杂的 Bi₂Se₃薄 膜中得到证实(图 3(a))^[30]。对单费米弧连接的外尔 半金属材料,连接两个外尔点之间的费米弧数目 为1,决定了材料的量子干涉相位为π^[31],因此材 料呈现弱反局域化的行为。目前已经在诸多拓扑 半金属材料中观察到了类似的现象。

3.2.2 手征反常负磁电阻

外尔半金属中独特的负磁电阻现象,已经在 许多实验中得到证实,例如TaAs、TaP以及具有 倾斜外尔锥的II类外尔半金属WTe^[32-34]。在TaAs 中,磁电阻随温度降低逐渐从正磁电阻转变为负 磁电阻(图3(b))。对于负磁电阻行为,主流观点认 为这归因于磁场下外尔费米子的手性不守恒行为。 动量守恒决定了粒子不能在不同手性的外尔点之 间发生散射。当磁场与电流平行时,正负手性外 尔点间的距离增加导致谷间散射减弱,电导获 得一个额外增加,发生手征反常,电子运动的速 率正比于 *E*·*B*。这种效应最早被Adler、Bell 和





图 3 (a) 随着 Cr 掺杂的 增加, 以x = 0.0/为界, Bi_{2-x}Cr_xSe₃ 中存在弱反局域化全弱局 域化过渡的行为^[30]; (b) TaAs 中 50 K 以下的手征反常负磁电阻行为^[32]; (c) SmB₆ 中 的非定域电输运测试^[40]; (d) V掺杂(Bi,Sb)₂Te₃ 中局域输运测量 $\rho_{31,35}$ 得到的量子反常 霍尔效应平台及非局域输运测量 $\rho_{31,36}$ 得到的边缘态所导致的非定域输运尖峰^[42]

Jackiw三人在粒子物理中提出(ABJ异常)^[35, 36]。在 实验测量中,有人质疑其来源也可能是电流射流 效应。当金属材料中存在强各向异性电导率和高 迁移率时,电流分布不均匀,材料的电阻展现出 强的各向异性,在沿磁场的方向展现出负磁电阻 特性^[37]。不过,手征反常的引入让人们看到了在 凝聚态物理中发现高能物理实验中未曾证实粒子 的可能性。

3.2.3 非定域电输运

非定域输运测试将测电压的电极置于电流接 触端以外,电流路径不同于经典的欧姆方式, 用Landauer—Büttiker公式^[38]来描述,是用来探测 材料边缘态的一种非常重要的手段。在强关联材 料SmB₆中,于自旋一轨道耦合(SOC)打开的能隙 附近发现了能带反转,且有实验观测到了拓扑保 护的边缘态,这说明SmB₆为拓扑近藤绝缘体^[39], 这一点通过非定域输运得到了证实。对SmB₆的非 定域输运测试采取了一种独特的方法^[40]:在材料 的上下表面都做了电流电极,同时在电流电极附 近的同面测量局域电压*V*₂₃,在远离电流电极的异 面测量非局域电压*V*₄₅。当局域电压远大于非局域 电压时,可以认为材料体导电占主导,反之表面 导电占主导。从图3(c)可以看到, 非局域电阻在4K以下逐渐上涨 并很快超过了局域电阻的数值, 证明了随温度降低,材料逐渐从 体导电过渡至表面导电的本质。 后续ARPES实验中也展现出了 SmB₆狄拉克电子的存在,是证明 其为拓扑近藤绝缘体的直接证 据^[41]。对于材料的拓扑表面态和 边缘态,非常适合利用非定域输 运来进行初步验证,尤其是对于 体能隙较小的拓扑材料。

3.2.4 电阻量子化效应

在拓扑材料中发现的各种量 子化效应,不仅带来了量子化的 电阻,也带来了无耗散的边缘导

电态(图 3(d))^[42]。在Si半导体薄膜中,电子被限制 在二维空间中形成二维电子气,在1.5K下观察到 量子霍尔效应^[4],霍尔电阻在不同磁场下出现了 一系列量子化平台与弹道输运边缘态。进一步地, 在二维HgTe/CdTe量子阱结构中,研究人员也观 察到了量子化的自旋霍尔效应。而为了实现手性 边缘态的量子反常霍尔效应,在掺Cr的拓扑绝缘 体(Bi, Sb),Te,中,利用铁磁序诱导能带发生劈 裂^[6]。通过栅压将费米能级调至能隙中,在30 mK 下观测到了量子反常霍尔效应。在本征磁性拓扑 绝缘体 MnBi₂Te₄中,人们观测到了更高温度的量 子反常霍尔效应[15]。对拓扑材料量子化效应的研 究贯穿了整个拓扑物理学的过程中,其所需要的 温度、磁场条件都是非常苛刻的。科学家们正在 努力寻找全新的拓扑材料,以突破液氦温度乃至 在更高温区实现量子反常霍尔效应。在这个过程 中,科学家们不仅发现了许多全新的物理现象, 还促进了薄膜生长与仪器测试技术的发展,见证 了凝聚态物理学的进步。

3.2.5 电阻的量子振荡

施加磁场后的能带转变为量子化的朗道能级,因此电阻发生了舒布尼科夫一德哈斯效应

(Shubnikov—de Haas, SdH)振荡,如图 4(c)所示^[43]。 通过测量材料的电阻率随磁场增大而振荡的曲线, 再对曲线进行傅里叶变换即可得到曲线的振荡周 期相位因子等与材料物理性质相关的信息。其中 振荡的相位因子 δ 为-1/2 + $\varphi_{\rm B}/2\pi + \varphi_{\rm 3D}$,第二项即 为贝里相位的贡献,详见Box 1。在拓扑半金属 中,存在非平庸的贝里相位π。与之对应的,就 是狄拉克点与外尔点附近线性色散的能带。因此, 拓扑电子的量子振荡行为相比自由电子的行为, 其相位因子应该相差一个1/2,据此可以判断费米

Box 1 拓扑材料的量子振荡

量子振荡一般是指被测物理量随着磁场改变而周期性振荡的现象。在磁场足够大时,材料的任何物理性质都 可以发生量子振荡行为,例如磁化强度、电阻率、热导率、热电系数、应变、磁转矩等,如图4所示。其中,电 阻率随磁场倒数呈周期性变化的量子振荡行为被称为Shubnikov—de Haas (SdH)振荡,磁化强度随磁场倒数呈周期 性变化的振荡被称为德哈斯—范阿尔芬(de Haas—van Alphen, dHvA)振荡。其原理为材料自身的能带在施加磁场 后会形成一个个的朗道能级,而随着磁场的变化,朗道能级逐个穿过费米面,因此物理性质会发生周期性的变化。 目前研究最广泛的量子振荡行为就是 SdH振荡,接下来将主要就 SdH振荡进行分析。SdH振荡主要利用Lifshitz— Kosevich公式来进行描述: $\Delta \rho \sim D \times \cos[2\pi \times (F/\mu_0 H+\delta)]$,里面重要的几个物理量,D是阻尼系数,F是振荡频率, δ 是振荡相位。采用上述公式对随磁场变化的数据进行拟合,就是为了获得以上的物理量,如图4(c),(d)所 示。进一步的,例如,通过研究随温度变化的振幅曲线,就可以提取出包含在阻尼系数项D中的温度衰减因 子 $R_{\rm r} = X/\sinh(X)$,其中 $X = (2\pi^2 k_{\rm b}/eh) \times T \times (m'/m_o)/B$,从而获得电子的有效质量。利用昂萨格(Onsager)关系F =($h/2\pi e) \times A_k$,可以通过振荡频率F得到垂直于外加磁场的费米面截面大小。通过 SdH振荡,可以获得材料的费米面 截面和有效质量,以及振荡本身的相位信息。在拓扑材料独特的线性色散能带中,材料的有效质量接近光子的零 质量,费米面截面也会因为零维的交叉点变的很小,振荡会在很低的磁场开始发生;而因为贝里相位的影响,振 荡的相位也会区别于拓扑平庸材料。



图4 拓扑材料不同参量的量子振荡 (a) Cd_3As_2 中以 1/B 为周期的磁化强度量子振荡^[25]; (b) SmB₆的磁转矩量子振荡^[40]; (c) Cd_3As_2 中以 1/B 为周期的电阻率振荡^[43]; (d) 利用 Lifshitz—Kosevich 公式对振荡曲线进行拟合^[43]; (e) TaAs 中以 1/B 为周期的热导率振荡^[52]

能级附近能带的拓扑性。通过测量狄拉克半金属 材料 Cd₃As₂中将磁场沿[100]—[001]方向进行转角 得到的磁电阻,拟合之后,我们发现相位在[100] 方向时,贝里相位接近0,而到[001]方向时,贝 里相位接近π,这反映了外尔点(狄拉克点加磁场 后转变为外尔点)所在的拓扑非平庸能带在磁场下 沿z轴时存在^[44]。拟合温度相关的衰减参数,也发 现了极低的电子有效质量,说明费米能级附近的 电子非常接近线性色散。SdH效应虽然无法直接 观测到材料的能带,但其可以在低温强磁场等条 件下反映材料的能带特征,且能通过相位、振荡 频率等信息反映能带的拓扑特性,测试也比较方 便,可以说很大程度上补足了ARPES无法触及的 部分。

3.2.6 基于贝里曲率的非常规输运

基于定义陈数的贝里曲率,研究者们在未量 子化的横向输运效应中发现了拓扑相关的内禀效 应。在磁性拓扑材料中施加电流,能获得相比普 通磁性材料高数十倍的横向霍尔电压,这是由拓 扑能带产生的大贝里曲率所决定的内禀反常霍尔 效应 (anomalous Hall effect, AHE, 图 2(b))。自 2018年在磁性外尔半金属Co₃Sn₂S₂中发现巨内禀 反常霍尔电导(anomalous Hall conductivity, AHC) 起,大反常霍尔效应便成为磁性与拓扑结合的一 个特征。在Co₃Sn₅S₂中, 计算得到的AHC与实验 得到的AHC高度一致,均在1100 S/cm 左右,说 明实验测量到的AHC主要来源于贝里曲率的内禀 贡献。此外,在Co₃Sn₂S,中将反常霍尔角由常规 磁性材料的3%大幅提升到20%^[19],以及掺杂Fe 元素后的33%[20]和制备成薄膜后的46%[21]材料, 为反常霍尔效应在存储、逻辑和传感方面的应用 奠定了重要基础。同时,在Co₂MnGa中也发现了 由结线环(nodal line)诱导的大内禀反常霍尔效应, 其在室温下仍然存在大于1000 S/cm的AHC及 12%的室温霍尔角^[23]。不仅如此,在几无净磁矩 的非线性反铁磁材料 Mn_xX(X = Sn,Ge)中也发现了 反常霍尔效应。在Mn_xX中,反铁磁交换耦合和 Dzyaloshinskii—Moriya 相互作用的组合破坏了字 称一时间对称性,产生了非零的贝里曲率,因此

反常霍尔效应得以出现^[45]。在磁性外尔半金属 EuB₆中,发现了磁场所调控的自旋倾斜态可调制 拓扑能带,从而调制贝里曲率和动态内禀反常霍 尔效应。因为外尔锥倾斜,材料的面内霍尔效应 存在奇对称的非常规行为^[22]。对于纵向输运行为, 在磁性外尔半金属CoS₂中,发现了线性色散能带 产生的贝里曲率主导的不饱和线性正磁电阻^[18]; 而在Co₃Sn₂S₂中,磁场在 xz 平面及 yz 平面内时, 观察到线性项导致的磁场反对称的磁电阻^[46]。

相比ARPES、STM等观测手段有诸多限制条件,电输运因其在各种条件下测试的便利性,成为验证拓扑材料,发现拓扑新物性的重要手段。 拓扑物理发端于电子输运行为,今后也会依赖电输运实现长足的发展。

3.3 热输运

热输运通过在样品内部施加均匀热流,从而 测量材料纵向或横向的电压或温差。热输运表征 作为电输运以外另一种重要的输运表征手段,测 量包括热导、能斯特效应、热霍尔效应等,在表 征晶体内部的声子行为以及电声耦合行为中起 到了非常重要的作用,对有限温度下的材料输 运研究起到了很好的补充。而对电热输运的联 系——Wiedemann—Franz (WF)定律而言,拓扑 材料对其发起了挑战,产生了WF定律失效的 情况。

3.3.1 反常能斯特效应

热电与拓扑材料关系最为密切的就是反常能 斯特效应,拓扑热电在应用方面有重要前景。莫 特关系指出,反常能斯特效应在低温下与反常霍 尔电导率的导数成正比。因此,通过精细的拓扑 能带设计,寻找磁性拓扑材料费米能级附近剧烈 变化的反常霍尔电导,在相同温度梯度下,就可 以获得高于普通磁性材料数十倍的能斯特电压(图 2(c))。在磁性外尔半金属Co₃Sn₂S₂^[47]、磁性节线 环半金属Co₂MnGa^[48]以及非共面反铁磁材料 YbMnBi₂^[49]中,均发现了较高的能斯特系数以及 热电导率(2—6 μV/K, 3—10 A·m⁻¹·K⁻¹)。反常能 斯特效应相比塞贝克效应,其优势在于无需 p-n 结即可应用。使用拓扑材料 Co₂MnGa 的能斯特电 堆,将多块相同规格的材料串联到相同的热梯 度下,可以在 15 K 的温差下实现 mV 级的电压 输出^[50]。目前,在拓扑能带的指引下,反常能斯 特效应的性能还在不断提升,电堆的应用也在不 断研究,具有非常良好的发展前景。

3.3.2 热输运的量子振荡

任何物理性质的量子振荡行为在磁场足够大 的情况下都会发生,对热输运性质中的热导率、 塞贝克效应以及能斯特效应等等也不例外。拓扑 半金属一般具有小费米面,因此材料会在较低的 磁场下发生量子振荡。对于热输运的量子振荡, 与SdH振荡类似,其随磁场倒数仍然呈现周期性 变化,仍然可以使用Lifshitz—Kosevich公式^[51]进 行解析, 详见 Box 1。目前对外尔半金属 TaAs、 NbP以及结线半金属ZrSiS已经有热输运量子振荡 的报道。在TaAs中发现了与SdH 振荡频率规律 相同的热导率振荡,说明热导率振荡仍然与磁 场下的朗道能级有关,而且其振荡幅度相比 SdH 振荡要大两倍。同时,在 TaAs 中还发现了 不符合 Wiedemann—Franz 定律的情况, 洛伦 兹数 L>>L₀^[52]。基于此实验结果,外尔费米子的 手性零声概念被提出,和磁场平行和反平行的手 性外尔谷间电流互相抵消,其不伴随实空间的电 荷流动,零声模式下只导热不导电。材料的热导 率增加, 电导率降低, 因此 Wiedemann—Franz 定律被极大突破。Wiedemann-Franz 定律的失 效,展现了一种全新的电热输运关系,而拓扑 材料体系为研究这种全新的电热输运关系提供 了平台。

3.4 谱学

3.4.1 角分辨光电子能谱(ARPES)

作为表征拓扑物态的终极证据,角分辨光电 子能谱(ARPES)成为确定拓扑能带结构的有力手 段。ARPES通过将高能光子入射到样品表面,收 集出射电子的角度以及动量信息,揭示费米能级 附近体态的能带和材料的表面态。人们利用 ARPES技术,先后证实了三维拓扑绝缘体Bi₂Se₃^[7] 的拓扑能带及表面态,狄拉克半金属Na₃Bi、 Cd₃As₂^[8, 10]的狄拉克交叉点,外尔半金属TaAs的 外尔点^[9–12],磁性外尔半金属Co₃Sn₂S₂的外尔点 和费米弧^[13, 14]等。ARPES除了可以进行单电子 近似理论下的能带表征,对多体相互作用的表征 也起到了很大作用。在强关联材料中,其准粒子 态可以被很好的定义,因此ARPES可以给出很 好的能带重整化的信息。人们研究了YbPtBi^[53] 中的重外尔费米子,其在高温时关联较弱,外 尔费米子有效速度较高,而到低温时关联引起 了能带重整化,外尔费米子的有效速度因此大 大降低。

作为能谱学手段,ARPES的最主要研究对象 是各种粒子间的相互作用,并获得最终各粒子动 量、能量的能谱结果。对关联不强的材料,计算 得到的能带可以简化为单电子图像,但ARPES能 谱仍然是基于实际多体相互作用所得到的能谱。 理论学家基于现有实验数据构建粒子相互作用的 图像,实验学家随着仪器与技术的不断进步,继 续发现全新的实验现象,打破现有的图像。 ARPES作为其中的重要表征技术,见证了科学的 螺旋式发展。

3.4.2 扫描隧道谱(STM/S)

扫描隧道谱(STM/S)利用电子的隧穿效应, 使用原子级的钨针尖与样品表面埃米级的距离所 产生的 nA—pA 级的电流来探测原子级平整的样 品形貌,对表面十分敏感。通过在样品表面引入 杂质与缺陷,准粒子散射会在局域态密度上反映 为散射前后所改变动量的周期性振荡。通过准粒 子干涉的手段,分析 dI/dV 的图像中驻波的特征信 息,扫描隧道显微镜(STM)也可以获得拓扑材料 动量空间中与众不同的色散信息。例如,在 Bi₂Te₃的 STM研究中,局域态密度中背散射波矢 的缺失,验证了拓扑表面态独有的背散射通道禁 闭的特性。在外尔半金属 TaAs、NbP^[54],以及磁 性外尔半金属 Co₃Sn₂S₂^[14]的 STM研究中,研究者 观察到了费米弧的存在,且发现 Co₃Sn₂S₂费米弧 具有截止面依赖性^[14]。在Co₃Sn₂S₂的实空间研究 也发现了新奇现象,例如在S缺陷附近的激发自 旋轨道极化子,可以采用自旋极化的STM进行实 空间成像研究^[55]。除此以外,STM还可以用来探 测二维材料中表面重构的情况,并据此判断材料 是否发生派尔斯(Peierls)相变以及是否构成电荷密 度波。借助对表面原子形貌的表征,可以方便地 展现实空间下局域杂质或缺陷的电子信息。通过 实空间与动量空间相结合来揭示电子的行为,这 是STM独具特色的能力。

3.4.3 红外光谱

傅里叶变换红外光谱主要表征材料的平衡态 光学特性,例如固体材料中的带内、带间跃迁以 及晶格振动,测量的物理量为光电导,表征材料 的光学响应。在拓扑半金属中,人们测量到了线 性的光电导效应,其与动量空间中线性交叉点的 数目成正比,且随频率的变化线性增加。例如, 在狄拉克半金属 ZrTe^[56]与外尔半金属 TaAs^[57]中 观察到了线性光电导。作为线性色散的能带标志 性行为,材料中的线性光电导也被认为主要由线 性色散能带贡献,这也被认为是外尔点或狄拉克 点存在的证据之一。在磁性外尔半金属Co₃Sn₂S₂ 中,在130-230 cm⁻¹也发现了线性的光电导^[58], 同时也发现了与 T^2 成正比的德鲁德(Drude)谱重, 这些结果同样证明了Co₃Sn₂S₂具有外尔特性的线 性色散能带。红外光谱可以覆盖很宽的能量范 围,从meV到eV,基本上覆盖了绝大部分材料 的激发能量,且测试准确度可达 µeV。相比 ARPES 与 STM 主要探测材料表面的电子性质, 红外光谱穿透深度大,可以探测体内的价带、导 带以及跃迁等行为,与ARPES 与STM 形成很好 的互补。

3.5 力学测量

研究者一般使用加压的手段使材料发生晶格 收缩、畸变或者结构相变,然后观测这些改变对 材料拓扑态的影响。产生超高压测量条件的方法 详见Box 2。晶格收缩会导致能带发生演化,或者 诱发结构相变而使电子结构改变。晶格畸变会降 低材料的空间对称性,往往会带来能带的劈裂, 材料会从高对称转变为低对称的拓扑态,例如从 狄拉克点劈裂为外尔点,发生拓扑相变。结构相 变则是从晶体结构层面对材料的电子结构进行更 彻底的改变,发生更加剧烈的拓扑相变。例如, 对TaAs 施加等静压,采用原位同步辐射 XRD 发 现,在14 GPa附近具有12对外尔点的四方相转变 为具有6对外尔点的高压六角相^[59]。在磁性外尔 半金属Co₃Sn₂S₂中,加压导致磁序及能带结构发 生变化,在20 GPa附近产生了6对新的外尔点, 且在40 GPa附近材料转变为顺磁态拓扑绝缘体 相,外尔点发生带间湮灭,从而发生铁磁外尔相 一顺磁拓扑绝缘体相的磁致拓扑相变[60]。加压所 产生的晶格收缩、晶格畸变、结构相变深刻影响 了材料的磁性、电子结构以及拓扑态,也诞生了 很多新奇物态。

3.6 中子散射

STM的准粒子干涉通过收集电子的始末动量 信息来获得材料的能带色散信息,而中子散射通 过收集入射中子的始末动量以及能量的信息来解 析材料的结构以及动力学信息。中子散射包括弹 性以及非弹性中子散射,其中,用来确定材料晶 体及磁结构的中子衍射技术作为一种弹性中子散 射技术,因散射前后中子能量不发生变化,只需 要收集散射中子强度随散射矢量的变化即可。在 磁性外尔半金属NdAlSi中,人们用中子衍射证实 了磁矢量演化受到外尔费米子的调制作用^[61]。外 尔费米子可以影响磁结构,这个全新的认识通过 中子衍射给出了直接的证据,刷新了大家对磁性 拓扑材料的认知,同时也进一步说明了中子衍射 在磁性拓扑材料研究中的重要性。

而在非弹性中子散射过程中,中子与声子或 者磁激发的磁振子发生作用,在这个过程中发生 了能量转移,因此需要收集射入材料的中子的始 末动量及能量信息进行分析。非弹性中子散射主 要研究材料中的晶格振动激发以及磁激发等激发

Box 2 极端测量条件的产生

凝聚态物理中的极端条件一般包括极低温、强磁场以及超高压等。对于低温的生成,最广泛的手段就是利用 液态气体进行降温,一般的液氮可以将温度降至77K,而利用沸点最低的液氦可以将温度降至1.2K左右。进一步 地,利用³He可以将温度降至0.3K左右。而更低至mK级的温度,需要稀释制冷机:当温度在0.87K以下时, 将³He从稀相中抽取蒸发,破坏稀相与浓相的相比例平衡,使得浓相中的³He不断进入稀相并吸收热量,从而实现 降温的目的,可以实现低于10mK的极低温。近年来也出现了一些基于新原理的极低温制冷方案,如绝热去磁、 自旋超固态磁制冷等。

强磁场包括稳态强磁场和脉冲强磁场。稳态强磁场技术主要利用水冷磁体与超导磁体来实现。水冷磁体使用 Bitter线圈或者多螺旋线圈,采用高速流动的水将磁体运行过程中产生的热量带走。而超导磁体使用超导材料制成 的线圈,受限于超导临界磁场,使用NbTi超导体(*T_c* = 9.7 K)或者Nb₃Sn超导体(*T_c* = 18 K)浸泡在液氦中使用,目前 能生成的最高磁场在20 T左右。脉冲强磁场相比稳态强磁场最大优势就是磁场强度高,目前非破坏性的脉冲场最 高可以达到100 T,破坏性的脉冲场可以达到1000 T。通过脉冲电源给液氮中的磁体施加电流产生脉冲磁场,磁场 中心使用液氦来对样品进行降温。脉冲磁场的测试时间非常短,只有几十毫秒,但可以实现高达10³—10⁵ T/s的变 场速率,对测试自旋动力学相关的微小磁相变行为非常灵敏。

静态高压技术分为预应力箍技术以及大支座技术。大支座技术采取金字塔形结构,以使压砧所受的压应力逐渐减弱。使用硬质合金压砧,可以使压力达到15 GPa,如果继续加上封垫,可以使静水压达到200 GPa。

将极低温、强磁场、超高压、强激光以及超快光谱等不同极端条件中的两个或多个综合到一起,可以实现

综合极端大装置测量手段。最普遍的 组合是将极低温、强磁场及超高压组合 在一起,进行磁性、电输运以及光谱等 测量。图5展示了中国科学院物理 研究所综合极端科学装置中60mK温 度、30T磁场的测量系统。一般来说, 在1K以下、10T以上的极端条件下可 以很好地揭示拓扑材料的量子行为,这 是大科学极端装置测量的优势。除此以 外,上海光源等同步辐射激光具有实验 室激光器所无法比拟的激光强度和分辨 率,在提高ARPES等光谱学手段的测 量精度方面广受青睐。随着科学的不断 进步,极端条件也在不断刷新着记录, 极大地助力了凝聚态物理研究的发展。



图5 中国科学院物理研究所综合极端科学装置的60 mK、30 T 测量系统

信息,是研究量子磁性以及磁性拓扑材料非常重要的手段。在磁性外尔半金属Co₃Sn₂S₂中,利用 非弹性中子散射与密度泛函理论(DFT)计算,发 现铁磁自旋波受到反常霍尔电导的影响,外尔费 米子与铁磁磁振子之间存在耦合^[62]。最近,利用 非弹性中子散射技术,在具有二维笼目结构的 YCu₃(OH)₆Br₂[Br_{0.33}(OH)_{0.67}]自旋激发谱中发现其 低能自旋激发的形式为狄拉克锥形状的连续谱, 给出了该体系中存在狄拉克自旋子的谱学证 据^[63]。材料的非弹性散射对电热输运会产生很大 的影响,利用非弹性散射可以很好地确定材料中 各种激发对输运以及拓扑态的贡献。中子虽然不 带电,但是具有1/2的自旋,在不与电子发生库 仑相互作用的情况下,可以通过磁偶极矩作用来 探测材料中的未配对电子和磁矩。与红外光谱类 似,中子束的波长和一般固体材料的晶格尺寸在 同一个数量级,其能量也和许多材料的元激发能 量相近,拥有很好的动量与能量分辨率,在拓扑 物态的研究中发挥着重要作用。

4 总结与展望

本文借助于拓扑材料的新奇物态与物性,展 示了拓扑物态先进表征与测量技术的魅力。研究 者们瞄准拓扑材料,在磁性、电输运、热输运、 光谱学等方面发现了一系列新奇的物态。尤其是 电输运行为,测试操作简单便捷,且可以在极端 的温度、磁场及压力下进行,适用范围十分广泛。 因此,在电输运中发现的物态和效应也最丰富, 如贝里相位相关的弱反局域化、外尔半金属的手 征反常、量子霍尔效应家族的弹道输运边缘态、 新奇相位的量子振荡SdH效应等。热输运性质作 为研究有限温度下电子行为的重要手段,围绕着 Wiedemann—Franz定律也开展了丰富的研究。同 时发现,材料的拓扑性质也产生了很多打破这个 定律的新现象。

拓扑材料发展的另外一个重要推动力就是表 面谱学技术。作为验证拓扑态的直接证据,拓扑 材料的证实都需要 ARPES 和 STM 实验。正因如 此,ARPES 与 STM 技术验证材料拓扑态的文章 一经发表就会产生很大轰动。除此以外,ARPES

参考文献

- [1] Thouless D J, Kohmoto M, Nightingale M P et al. Phys. Rev. Lett., 1982, 49:405
- [2] Berry M V. Proc. R. Soc. Lond. A, 1984, 392:45
- [3] Bloch F. Z. Phys., 1929, 52(7): 555
- [4] Klitzing K V et al. Phys. Rev. Lett., 1980, 45:494
- [5] König M et al. Science, 2007, 318:766
- [6] Chang C Z et al. Science, 2013, 340:167
- [7] Chen Y L et al. Science, 2010, 329:659
- [8] Liu Z K et al. Science, 2014, 343:864
- [9] Lv B Q et al. Phys. Rev. X, 2015, 5:031013
- [10] Liu Z, Jiang J, Zhou B et al. Nat. Mater., 2014, 13:677
- [11] Xu S Y et al. Science, 2015, 349:613
- [12] Yang L, Liu Z, Sun Y et al. Nat. Phys., 2015, 11:728
- [13] Liu D F et al. Science, 2019, 365: 1282
- [14] Morali N et al. Science, 2019, 365: 1286
- [15] Deng Y et al. Science, 2020, 367:895

与红外光谱等技术都具有谱学本质——通过收 集粒子末态的能量、动量的信息来反映材料多 体物理的本质。凝聚态物理终究是研究摩尔量 级粒子之间的相互作用及其所展现出的宏观 现象。

除此以外,磁性也是材料中非常重要的一个 性质。磁性使材料的时间反演对称性破缺,能带 直接发生了劈裂,对电子结构产生了非常重大的 影响,在实验研究方面有很大的差异。磁性材料 包含居里温度、磁化强度、矫顽场等相关的信息; 磁光克尔、非弹性中子散射等手段用来研究材料 的磁性非平衡态或者磁激发态;基于能带拓扑理 论,许多存在巨反常霍尔效应、巨能斯特效应、 巨磁光克尔效应、巨线性正磁电阻效应等的磁性 拓扑材料被发现,开启了电/热输运的第二春。磁 性拓扑材料是拓扑物理的一个重要出口,对其物 态和物性的表征和测量将是磁性拓扑材料研究的 重要内容。

将拓扑学引入能带理论,可以说是物理学的一大成功典范。拓扑理论让物理学家找到了 不同材料能带中存在的独特共性,并由此开启 了材料的拓扑时代。而各种先进的物态与物性 表征测量技术,则使得动量空间中的拓扑态绽 放光彩,为未来拓扑量子器件功能应用奠定了 重要基础。

- [16] Ali M et al. Nature, 2014, 514:205
- [17] Kao I H et al. Nat. Mater., 2022, 21:1029
- [18] Zhang S, Wang Y *et al.* Proc. Natl. Acad. Sci. USA., 2019, 119 (45): e2208505119
- [19] Liu E, Sun Y, Kumar N et al. Nat. Phys., 2018, 14: 1125
- [20] Shen J et al. Adv. Funct. Mater., 2020, 30: 2000830
- [21] Yang J et al. Nature Electronics, 2025, https://doi.org/10.1038/ s41928-025-01364-8
- [22] Shen J et al. The Innovation, 2023, 4(2): 100399
- [23] Sakai A, Mizuta Y P, Nugroho A A et al. Nat. Phys., 2018, 14: 1119
- [24] 牛谦, 高阳. 物理, 2024, 53(1):1
- [25] Pariari A et al. Phys. Rev. B, 2015, 91:155139
- [26] Ye L, Chan M K, McDonald R D et al. Nat. Commun., 2019, 10: 4870
- [27] Okamura Y, Minami S, Kato Y et al. Nat. Commun., 2020, 11:

4619

- [28] Higo T, Man H, Gopman D B et al. Nat. Photon., 2018, 12:73
- [29] Lu H Z et al. Phys. Rev. Lett., 2011, 107:076801
- [30] Liu M et al. Phys. Rev. Lett., 2012, 108:036805
- [31] Dai X et al. Phys. Rev. B, 2016, 92:035203
- [32] Huang X et al. Phys. Rev. X, 2015, 5:031023
- [33] Arnold F, Shekhar C, Wu S C et al. Nat. Commun., 2016, 7: 11615
- [34] Wang Y, Liu E, Liu H et al. Nat. Commun., 2016, 7:13142
- [35] Adler S L. Phys. Rev., 1969, 177:2426
- [36] Bell J S, Jackiw R. Nuovo Cimento A, 1969, 60:47
- [37] Ong N P, Liang S. Nat. Rev. Phys., 2021, 3:394
- [38] Büttiker M, Imry Y, Landauer R et al. Phys. Rev. B, 1985, 31: 6207
- [39] Kim D, Thomas S, Grant T et al. Sci. Rep., 2013, 3:3150
- [40] 李璐. 拓扑近藤绝缘体. 物理, 2020, 49(9): 595
- [41] Jiang J, Li S, Zhang T et al. Nat. Commun., 2013, 4:3010
- [42] Chang C Z et al. Phys. Rev. Lett., 2015, 115:057206
- [43] Zhao Y et al. Phys. Rev. X, 2015, 5:031037
- [44] Xiang Z J et al. Phys. Rev. Lett., 2015, 115:226401
- [45] Kuroda K, Tomita T, Suzuki M T et al. Nat. Mater., 2017, 16:

- 1090
- [46] Jiang B Y et al. Phys. Rev. Lett., 2021, 126:236601
- [47] Guin S N et al. Adv. Mater., 2019, 31:1806622
- [48] Sakai A, Mizuta Y P, Nugroho A A et al. Nat. Phys., 2018, 14: 1119
- [49] Pan Y, Le C, He B et al. Nat. Mater., 2022, 21, 203
- [50] Chen M et al. Adv. Energy Mater., 2024, 14:2400411
- [51] Lifshitz L M, Kosevich A M. Zh. Eksp. Teor. Fiz., 1955, 29:730
- [52] Xiang J et al. Phys. Rev. X, 2019, 9:031036
- [53] Guo C Y *et al.* Nat. Commun., 2018, 9:4622
- [54] Chang G et al. Phys. Rev. Lett., 2016, 116:066601
- [55] Xing Y, Shen J, Chen H et al. Nat. Commun., 2020, 11:5613
- [56] Chen R Y et al. Phys. Rev. B, 2015, 92:075107
- [57] Xu B et al. Phys. Rev. B, 2016, 93:121110
- [58] Yang R et al. Phys. Rev. Lett., 2020, 124:077403
- [59] Zhou Y et al. Phys. Rev. Lett., 2016, 117: 146402
- [60] Zeng Q et al. Adv. Quantum Technol., 2022, 5:2100149
- [61] Gaudet J, Yang H Y, Baidya S et al. Nat. Mater., 2021, 20:1650
- [62] Liu C, Shen J, Gao J et al. Sci. China-Phys. Mech. Astron., 2021,64:217062
- [63] Zeng Z, Zhou C, Zhou H et al. Nat. Phys., 2024, 20, 1097



大连齐维科技发展有限公司

地址:大连高新园区龙头工业园龙天路27号

- 电话: 0411-8628-6788 传真: 0411-8628-5677
- E-mail: <u>info@chi-vac.com</u> HP: http://www.chi-vac.com

表面处理和薄膜生长产品: 氩离子枪、RHEED、磁控溅射靶、束源炉、电子轰击蒸发源、样品台。



超高真空腔室和薄膜生长设备: PLD系统、磁控溅射系统、分子束外延系统、热蒸发镀膜装置。

