arXiv:2301.00958v1 [cond-mat.mtrl-sci] 3 Jan 2023

与洛伦兹破缺的外尔费米子相关的横向圆偏振光电效应

MohammadYahyavi*, [1] Yuanjun Jin*, [1] Yilin Zhao, [1] Zi-Jia Cheng, [2]Tyler A. Cochran, [2] Yi-Chun Hung, [3] Tay-Rong Chang, [4,5,6] Qiong Ma, [7,8]Su-Yang Xu, [9] Arun Bansil, [10] M. Zahid Hasan, [2,11] 和 Guoqing Chang †[1]

[1]南洋理工大学物理与数学科学学院物理与应用物理学部，新加坡，新加坡[2]普林斯顿大学物理系拓扑量子物质与先进光谱学实验室（*B7*），美国新泽西州普林斯顿 *08544*[3]中央研究院物理研究所，台湾台北 *115229*[4]国立成功大学物理系，台湾台南[5]量子前沿研究与技术中心（*QFort*），台湾台南[6]国家理论科学中心物理学部，台湾台北 *10617*[7]波士顿学院物理系，美国马萨诸塞州栗树山 *02467*[8]*CIFAR*阿兹列里全球学者项目，*CIFAR*，加拿大多伦多[9]哈佛大学化学与化学生物学系，美国马萨诸塞州剑桥[10]东北大学物理系，美国马萨诸塞州波士顿 *02115*[11]劳伦斯伯克利国家实验室，美国加利福尼亚州伯克利 *94720*（日期：2023年1月4日）

*这些作者对本研究的贡献相同。

† 通讯作者（电子邮箱）：guoqing.chang@ntu.edu.sg

近年来，量子材料的非线性光学响应取得了显著进展，揭示了其非平庸的几何与拓扑性质。一个引人注目的例子是与外尔费米子陈数相关的量子化纵向圆偏振光电流效应（CPGE），而韦尔半金属中的横向圆偏振光电流效应（CPGE）物理仍鲜有研究。在此，我们证明，洛伦兹不变外尔费米子的横向圆偏振光电流效应必为零。我们发现，外尔费米子的横向光电流不仅与陈数有关，也与凝聚态物质系统中洛伦兹对称性破缺的程度有关。基于一般的双能带模型分析，我们提出了一个新的有力公式，可根据外尔费米子的倾斜项和翘曲项计算横向圆偏振光电流效应。我们的结果有助于在实验中设计具有较大横向圆偏振光电流效应的韦尔半金属，并已应用于十余种外尔材料，以估算其光电流。我们的方法为研究无质量或有质量准粒子的圆偏振光电流效应铺平了道路，从而助力设计下一代量子光电子学。

近年来，我们对拓扑量子材料非线性光学响应的理解取得了快速进展[1–11]。非线性电磁学为揭示、探测和调控波函数几何与拓扑开辟了新途径，有望推动未来应用的发展[12–19]。在非磁性材料中，圆偏振光电流效应（CPGE）可产生不随时间振荡的直流电，并直接探测能带分辨的贝里曲率[5,8,15]。在这方面，动量空间中含有磁单极子的外尔半金属为测量贝里曲率提供了理想平台[4,20,21]。理论研究已表明，手性外尔半金属的纵向 CPGE 量子化为外尔费米子的陈数[22–25]。近期实验则在拓扑手性晶体 RhSi 家族中实现并验证了量子化 CPGE 的特征[26–34]。令人惊讶的是，横向 CPGE 在实际应用中更为重要，因为电流流动方向垂直于入射光的偏振方向，因而易于探测，并可用于下一代光传感器、太阳能电池和信息处理。尽管实验研究十分广泛，且已在不同外尔材料中探测到巨大的横向光电流[7, 11, 12, 15, 24, 35–40]，但对韦尔半金属中的横向 CPGE 仍缺乏全面且根本的物理解释。这阻碍了

应用的发展　将韦尔半金属作为下一代量子光电探测器　　s.

因此，探究横向圆偏振光电流效应背后的物理机制，并揭示观测到其较大数值的判据至关重要。注入电流的二阶张量写作[22,23]

$$\beta_{ij}(\omega) = \frac{\pi e^3}{\hbar^2}\epsilon_{j\beta\gamma}\int_{\mathbf{k}}\sum_{n,m} f^{\mathbf{k}}_{nm}\Delta^{i}_{\mathbf{k},mn}r^{\beta}_{\mathbf{k},nm}r^{\gamma}_{\mathbf{k},mn}\delta(\omega_{mn}-\omega) \tag{1}$$

其中，$\int_{\mathbf{k}} = \int d^dk/(2\pi)^d$, $\hbar\omega_{nm} = \hbar\omega_n - \hbar\omega_m$ 是能带 n 与m之间的能量差，　f_n 是能带 n, $f_{nm} = f_n - f_m$, $\Delta^i_{mn} = \partial_{k_i}E_{mn}/\hbar$的费米-狄拉克分布，而 $r^{\beta}_{nm} = i\langle u^n_{\vec{k}}|\partial_{k_\beta}|u^m_{\vec{k}}\rangle$ 是非对角贝里联络或带间跃迁矩阵元。在数值计算中，面临的障碍之一是：根据式 1[22] ，通过矩阵元与联合态密度的乘积来计算横向圆偏振光电流效应，代价过高，因为要获得可靠结果，需要在外尔节点附近使用非常密集的 k网格。

为研究韦尔半金属的圆偏振光电流注入响应，我们首先从相对论性外尔哈密顿量出发：

$$\mathcal{H}(\mathbf{k}) = \sum_{i=x,y,z}\nu_i\hbar k_i\sigma_i \tag{2}$$

其中 ν_i 为速度，　$\hbar$ 为约化普朗克常数，　k_i 为动量，　σ_i 为泡利矩阵。可以看出，对于各向同性的相对论性外尔费米子（图1a），圆偏振光电流效应张量迹是量子化的，这与 $\mathrm{Tr}[\beta(\omega)] = i\mathcal{C}\pi e^3/\hbar^2$提出的先前理论一致，其中$\mathcal{C} = +1$ 是外尔费米子的单极子荷（图1 b）[22]。相比之下，各向同性相对论性外尔费米子的圆偏振光电流效应张量的所有非对角分量均为零。

为了更好地理解这一结果，我们针对动量空间中的外尔点进行对称性分析。在相对论性外尔哈密顿量中，　β_{ij}（ω）的注入电流与光学跃迁发生处的 k 点上　$\tilde{\beta}_{ij}$(k ω) $\propto k_i\Omega^j$ (k) 的积分成正比；此处 Ω^j(k) 是沿　j 方向的贝里曲率分量。对于保持洛伦兹对称性的相对论性外尔费米子，其能带色散和贝里曲率在所有方向上均为各向同性（图 1c 和图 1d）。在这种情况下，关于动量空间中的外尔点，Ω^j(k) 在　j 方向上是奇函数，在其他方向上是偶函数˜　　˜（详见补充材料第一节）。因此，在此条件下，　β_{ii}(k ω)（β_{ij}(k ω)）相对于 k 是˜偶函数（奇函数）。这明确表明，　β_{ij}(k ω) 在费米面上的积分为零，说明相对论性外尔节点的圆偏振光电流效应非对角分量消失。

各向同性外尔半金属等价于洛伦兹不变外尔费米子，并遵循

洛伦兹对称性[21,41]（图1c）。事实上，真实材料中的能带色散不可避免地会出现翘曲和倾斜，从而破坏量子场论中外尔费米子的洛伦兹不变性。在图1e 中，我们展示了 TaAs 中外尔节点附近的能带结构[20,42,43]，，可见该外尔节点并非高度各向同性，也不遵循洛伦兹对称性。在这种情况下，穿过闭合费米面的贝里曲率分布不对称，因此可能产生各向异性激发（图1f）。

上述分析表明，洛伦兹对称性破缺项确保了圆偏振光电流效应张量的非对角分量。接下来，我们将引入新的公式，并将结果与式2的结果进行比较，以建立圆偏振光电流效应张量的非对角分量与洛伦兹对称性破缺项之间的精确对应关系。下面我们讨论圆偏振光电流效应张量的非对角分量在什么条件下保持非零。

翘曲修正的影响。

首先，我们考虑外尔哈密顿量中的翘曲修正项，其表达式为

$$\mathcal{H}(\mathbf{k}) = \sum_{i=x,y,z} \left(\nu_i \hbar k_i + \delta_i \hbar^2 k_i^2\right) \sigma_i \tag{3}$$

其中 ν_i 为速度， δ_i 为哈密顿量的翘曲修正项，而 σ_i 为泡利矩阵。在 $\delta_i = 0$的极限下，该模型简化为描述标准外尔点的哈密顿量。加入翘曲修正后，费米面成为一个非对称的锥形椭圆，且其中心偏离节点（图2a，上图）。因此，对于固定的激光频率，外尔费米子周围的光学跃迁呈各向异性（图2a，下图）。

为建立一种规范形式，并明确横向圆偏振光电流效应与哈密顿量中的翘曲修正项之间的关系，我们首先考虑三 个方向上的 δ_i 取相同数值的情形（图2b）。与我们先前的分析一致，横向圆偏振光电流效应的非零值源于洛伦兹对称性的破缺。以 β_{xy} 为例，可以看出它随翘曲项 $\beta_{xy} \propto \delta^2$的二次幂呈线性标度关系。其他所有横向圆偏振光电流效应分量也同样如此（详见补充材料第二节）。随后，我们考虑另一组参数，其中改变速度项以反转陈数，同时翘曲项也有所不同（图2c）。可以看到，横向圆偏振光电流效应分量与翘曲项之间的标度关系仍然成立。此外，与图2b相比，图2c中横向圆偏振光电流效应分量的符号发生了翻转。这表明，外尔费米子的横向圆偏振光电流效应分量也与其陈数有关。我们还可以发现

外尔费米子的速度项增大时，横向圆偏振光电流效应分量的振幅会减小。在确定了不同模型的详细横向圆偏振光电流效应后（详见补充材料第二节），我们可以阐明翘曲修正与圆偏振光电流注入响应之间的对应关系。我们的详细分析表明，外尔哈密顿量中翘曲修正项的圆偏振光电流效应张量的非对角分量具有如下形式

$$\beta_{ij} = \frac{-2e^3\,\mathrm{sgn}(\mathcal{C})}{3\pi h^2}\left[\frac{\delta_i\delta_j}{\nu_i\nu_j^3}(\hbar\omega)^2\right] \tag{4}$$

将上述方程的拟合结果与数值直接计算得到的圆偏振光电流效应张量非对角分量进行比较，结果如图 2d、e 所示，其中 ν_i 和 δ_i取任意值。可以看出，两组光谱吻合良好。

在式 4中，我们将费米能级设定为恰好位于外尔节点的能量处。在真实材料中，外尔点能量与费米能（ μ ）之间会存在能量差 $\mu = \epsilon_w - \epsilon_F$。为了进一步考察 μ 对光电流的影响，我们计算了不同 μ 取值下横向圆偏振光电流效应随光子能量的变化（图 2f）。光电流在特征光子能量 $2|\mu|$处跃变的陡峭程度取决于费米能，并可表示为：

$$\beta_{ij} = \frac{-2e^3\,\mathrm{sgn}(\mathcal{C})}{3\pi h^2}\left[\frac{\delta_i\delta_j}{\nu_i\nu_j^3}(\hbar\omega)^2\,\Theta(\hbar\omega - 2\mu)\right] \tag{5}$$

其中， $\Theta(x)$ 是海维赛德阶跃函数。将上述方程的拟合结果与数值直接计算结果进行比较可知，该公式清晰地呈现了含翘曲修正项的外尔哈密顿量所对应的横向圆偏振光电流效应的物理图像。我们的式 5 表明，要获得较大的横向圆偏振光电流注入响应，能带结构必须具有较强的翘曲项。

倾斜速度的影响。

生成圆偏振光电流效应张量非对角分量的另一种方法，是考虑哈密顿量中锥项的速度倾斜。描述外尔哈密顿量的最一般低能有效模型具有如下形式

$$\mathcal{H}(\mathbf{k}) = \sum_{i=x,y,z}\left(\nu_i^t\hbar k_i + \nu_i\hbar k_i\sigma_i\right) - \mu \tag{6}$$

其中， ν_i 为速度， ν_i^t 为倾斜速度，它会打破$\mathbf{k}$ 和-$\mathbf{k}$处能带的简并； ϵ_F 为化学势， σ_i 为泡利矩阵。

与会改变费米面形状的翘曲项不同，倾斜项只会改变激光激发下外尔费米子与其激发态费米面之间的相对位置，而费米面及其贝里曲率分布仍保持各向同性（详见补充材料第二节）。然而，在低频激光照射下，倾斜的外尔费米子仍可能发生各向异性光激发。如图3a 所示，当光子能量大于 ϵ_1 但小于 ϵ_2时，只有外尔锥一侧的电子会被激发，而另一侧的光学跃迁则受到禁止。这对应于仅有部分能谱受到泡利阻塞的跃迁。因此，在固定激光频率下，激发态费米面上会出现一个空穴，从而在光子能量区间 $\epsilon_1 < \hbar\omega < \epsilon_2$ 内引发各向异性光激发（图3b）。该能量区间取决于倾斜程度最大的方向：$\epsilon_{1,\ 2} = \frac{2|\mu|}{1\pm\mathcal{W}_T}$，其中$\mathcal{W}_\mathcal{T} = \sqrt{(\frac{\nu_x^t}{\nu_x})^2 + (\frac{\nu_y^t}{\nu_y})^2 + (\frac{\nu_z^t}{\nu_z})^2}$是无量纲倾斜参数，用于表征外尔锥的最大倾斜程度。（详见补充材料第二节）。

为了建立规范形式，并精确描述横向圆偏振光电流效应与哈密顿量倾斜项之间的联系，我们沿用了上述相同步骤。分析表明，外尔哈密顿量倾斜项对应的圆偏振光电流效应张量的非对角分量具有如下形式

$$\beta_{ij} = \frac{3e^3\,\mathrm{sgn}(\mathcal{C})}{\pi h^2}\left[\frac{\nu_i^t\nu_j^t}{\nu_j^2}\frac{1}{\mathcal{W}_\mathcal{T}{}^2}\sum_{n=1}^{2}(-1)^n\sin(\gamma_n)\cos(\gamma_n)^3\right] \tag{7}$$

with

$$\gamma_n = \arcsin\{\frac{1}{\mathcal{W}_\mathcal{T}}[\frac{2|\mu|}{\hbar\omega} + (-1)^{n+1}]\} \tag{8}$$

为确认公式的正确性，我们研究了图 ν_i 和 ν_i^t 取任意值时圆偏振光电流效应张量的非对角分量，结果见图 3c（详情见补充材料第二节）。首先可以看到，在发生各向异性光激发的能量窗口（$\epsilon_1 < \hbar\omega < \epsilon_2$）内，确实存在非零的横向圆偏振光电流效应。基于原始公式（式 1，图 3c 中的蓝色实线）和我们的公式（式 7 ，图3c 中的点线）进行的计算都得到了这一结果。其次，在允许非零横向圆偏振光电流效应的窗口内，基于公式（式 7）得到的结果与直接计算结果吻合良好。

沿着**k**空间中的某些特定方向，如果构成外尔锥的两条色散曲线具有同号的费米速度，则称其为II型外尔节点（图3d）。在II型外尔半金属中，对于任意的 μ ，当光子的能量大于 ϵ_1时，只有外尔锥一侧的电子会被激发，而另一侧的光学跃迁则被禁止

（图3d、e）。令人惊讶的是，由I型外尔费米子（$\mathcal{W}_\mathcal{T} < 1$）得到的方程7 对II型外尔费米子[41] （$\mathcal{W}_\mathcal{T} > 1$）仍然成立。为验证这一点，图7 中横向圆偏振光电流效应的拟合结果，与利用方程1 进行精确数值计算所得结果的拟合效果进行了比较，如图3f所示，其中 ν和 ν'取任意值。可以看出，两组光谱吻合良好。

我们的公式还可以帮助我们解析地找出倾斜项产生较大横向圆偏振光电流效应光电流的条件。具体而言，我们关注公式7中的圆偏振光电流效应峰值（详情见补充材料第二节）。我们发现， β_{ij} 在条件 $\nu_k^t/\nu_k = 0$ 和 $\nu_i^t/\nu_i = \nu_j^t/\nu_j$下达到最大值。为了验证这一发现，我们计算了以 ν_i^t/ν_i 和 ν_j^t/ν_j 为变量、取 $\nu_k^t/\nu_k = 0$时的相图。为获得横向圆偏振光电流效应的最大值，我们在各向异性激发可能发生时，检查了光子能量范围内的峰值。根据公式7计算归一化的 β_{ij} 后，我们可以看到，通过调节 i 和 j方向的倾斜速度，非对角圆偏振光生电流效应的最大值会受到显著影响（图3g）。现在，我们通过原始公式1验证这一发现。可以看到，与基于公式7的分析一致，对于I型（图3h）和II型（图3i）外尔费米子， β_{xy} 在 $\nu_z^t/\nu_z = 0$ 和 $\nu_x^t/\nu_x = \nu_y^t/\nu_y$ 时达到最大值。对于I型外尔费米子，当参数偏离 $\nu_z^t/\nu_z = 0$ 和 $\nu_x^t/\nu_x = \nu_y^t/\nu_y$ 时，峰值会迅速下降（图3h）。而对于II型外尔费米子，改变倾斜参数时，峰值变化较为缓慢。

现在，我们将外尔方程中的翘曲项和倾斜项结合起来，

$$\mathcal{H}(\mathbf{k}) = \sum_{i=x,y,z} \left(\nu_i^t \hbar k_i + \left(\nu_i \hbar k_i + \delta_i \hbar^2 k_i^2\right) \sigma_i\right) - \mu \tag{9}$$

那么，外尔费米子的广义横向圆偏振光电流效应具有以下形式，

$$\beta_{ij} = \frac{e^3 \,\mathrm{sgn}(\mathcal{C})}{\pi h^2} \left[\frac{3\nu_i^t \nu_j^t}{\nu_j^2} \frac{1}{{\mathcal{W}_\mathcal{T}}^2} \sum_{n=1}^{2} (-1)^n \sin(\gamma_n) \cos(\gamma_n)^3 - \frac{2\delta_i \delta_j}{3\nu_i \nu_j^3} (\hbar\omega)^2 \,\Theta(\hbar\omega - 2\mu)\right] \tag{10}$$

我们方程10 中来自倾斜项的第一部分在低频下对横向圆偏振光电流效应电流张量有主要贡献，而来自翘曲项的第二部分在高频下有主要贡献。我们还可以看到，外尔节点倾斜项产生的横向圆偏振光电流效应在 $\hbar\omega = 2|\mu|$处必须严格为零（详情见补充材料第二节）。当 $\hbar\omega < 2|\mu|$ 时，翘曲项产生的横向圆偏振光电流效应。换句话说，如果该光子能量非常接近但小于 $2|\mu|$，测得的来自外尔半金属的横向圆偏振光电流效应将趋近于零。因此，测量

外尔半金属中的横向圆偏振光电流效应也为测量外尔节点相对于费米能级的能量提供了一种强有力的工具。

真实材料中的横向圆偏振光电流效应。

现在，我们将研究结果应用于实验上最早发现的韦尔半金属 TaAs。没有自旋轨道耦合（SOC）时，TaAs 是一种节点环半金属。开启 SOC 后，沿高对称线的导带和价带之间打开了约 40 meV 的能隙[20,21,42,43]（图 4 a）。为避免有质量节点环的影响，我们在此聚焦于低频区域。在韦尔半金属 TaAs 中，外尔点分为两类：八个外尔点位于 $k_z = 0$ 平面上，另有十六个外尔点位于$k_z = 0$ 平面之外（图 4 b）。我们只选取由十六个外尔节点构成的一类，因为它们接近费米能级；在低频下（$\hbar\omega$ <40meV），只有这一类对横向圆偏振光电流效应有贡献（图 4b）。

我们使用式9中的有效模型，其参数 ν^t、 ν和 δ，是通过拟合源外尔点附近 TaAs 的密度泛函理论能带结构得到的（图 4c）。随后，利用直接从拟合中获得的式9中哈密顿量的参数组，即可使用式10中的公式计算圆偏振光电流效应张量的非对角分量。我们还常规地使用式1 计算源外尔费米子附近的圆偏振光电流效应，结果在 200^3的网格细化下收敛良好。本工作首次提出的式10 中的公式所得结果，与式1的直接计算结果吻合良好（图 4d）。

一旦得知源外尔点的横向圆偏振光电流效应，我们便可根据横向圆偏振光电流效应的对称性分析，利用公式 10 求出所有其他外尔点的圆偏振光电流效应，从而重构完整的圆偏振光电流效应（详情见补充材料中的表 S1、S2）。在 TaAs 中，非零的圆偏振光电流效应只有 β_{xy} 和 β_{yx}。根据公式 10，源外尔点的六个横向分量均非零（详情见补充材料中的表 S1、S2）。然而，对于通过 M_x 镜面与源外尔点相关联的外尔点，参数 k_x、v_x、 v_x^t 和 C 会变号，而所有其他分量保持不变。因此，源外尔费米子及其镜面伙伴的圆偏振光电流效应分量 yz 和 zy 会相互抵消。考虑所有对称性后，利用公式 10还可看出，TaAs 中沿 β_{xy} 和 β_{yx} 方向的非对角圆偏振光生电流效应均非零，这与实验测量结果一致。现在，我们基于源外尔费米子，按照 $\beta_{ij} = 8(\beta_{ij}^S - \beta_{ji}^S)$ 重构 TaAs 圆偏振光电流效应张量的完整非对角分量。数值重构

直接计算得到的圆偏振光电流效应张量非对角分量见图 4d。可以看出，两组光谱吻合良好。我们的对称性分析表明，如果材料属于以下点群之一 C_1、 C_2、 C_s、 C_{2v}、 C_4、 S_4、 C_{4v}、 C_3、 C_{3v}、 C_6和 C_{6v}，则通过计算独立外尔点，利用我们推导的公式可将上述方法推广至其他空间群。详情见补充信息中的表 S1、S2。

这一结果表明，非零横向圆偏振光电流效应的大小取决于各个外尔节点的横向圆偏振光电流效应的贡献。我们想指出，我们工作中推导出的公式在研究外尔费米子的圆偏振光电流效应方面，远比原始公式（式1 ）更强大。在低频区域研究韦尔半金属的圆偏振光电流效应既耗费时间又成本高昂，尤其是在红外区域，而韦尔半金属是该区域内很有前景的光探测器候选材料。研究发现，基于矩阵元与联合态密度的乘积[22], ，横向圆偏振光电流效应随着布里渊区积分所用 N^3 -点 k数量的增加而趋于缓慢收敛。例如，对于 TaAs，使用原始公式获得可靠的圆偏振光电流效应结果需要数周时间（图4e），且内存开销达到 TB 量级（图4f）。相比之下，使用我们的公式，计算时间和内存开销都微不足道。凭借这一优势，我们将该方法应用于十余种其他已知外尔材料：TaP、NbP、NbAs、LaAlGe、PrAlGe、CeAlGe、Ta_3S_2, WP_2, MoP_2, $Co_3Sn_2S_2$, $SrSi_2$, $HgCr_2Se_4$,CeSbTe、Ta_2Se_8I 和 $TaIrTe_4$[6]。我们通过算法检验的每种韦尔半金属的横向圆偏振光电流效应计算详情，见补充章节 IV、V。

我们的研究揭示，在凝聚态物理中，由于洛伦兹对称性破缺，外尔费米子可以产生非零的横向圆偏振光电流效应。与韦尔半金属中的纵向 CPGE 仅取决于陈数不同，我们表明，横向圆偏振光电流效应与洛伦兹破缺程度之间存在丰富得多的对应关系。我们首次为外尔费米子的横向圆偏振光电流效应提供了一条简洁而强大的新公式，可广泛应用于大量外尔材料，从而寻找更理想的光探测器候选材料。除外尔费米子外，这一方法也有望应用于其他具有非平庸波函数几何的准粒子，包括但不限于多重简并手性费米子、节点环，以及三维和二维材料中的无质量或有质量狄拉克费米子。我们的研究成果将极大加快

寻找下一代拓扑光电探测器的进程。

利益冲突

作者声明不存在任何利益冲突。

致谢

南洋理工大学的这项工作得到了新加坡国家研究基金会「奖学金」（NRF-NRFF13-2021-0010）及南洋理工大学启动基金（NTUSUG）的支持。普林斯顿大学的工作得到了戈登与贝蒂·摩尔基金会的支持（GBMF4547 和 GBMF9461；M.Z.H.）。东北大学的工作得到了空军科学研究办公室的资助（项目编号 FA9550-20-1-0322），并受益于东北大学高级科学计算中心（ASCC）和 Discovery 集群提供的计算资源。国立成功大学的工作得到了台湾国家科学及技术委员会（NSTC）2030跨世代年轻学者计划（MOST111-2628-M-006-003-MY3）、台湾国立成功大学（NCKU）及台湾国家理论科学中心的支持。本研究部分得到教育部高等教育深耕计划对国立成功大学校务发展总部的资助。

---

[1] Hasan, M. Z. & Kane, C. L. 专题综述：拓扑绝缘体。《现代物理评论》**82**, 3045 (2010).[2] Qi, X.-L. & Zhang, S.-C. 拓扑绝缘体和超导体。《现代物理评论》**83**, 1057-1110 (2011).[3] Bansil, A., Lin, H. & Das, T. 拓扑能带理论。《现代物理评论》**88**, 021004 (2016).[4] Armitage, N. P., Mele, E. J., & Vishwanath, A. 三维固体中的外尔和狄拉克半金属。《现代物理评论》**90**, 015001 (2018).[5] Nagaosa, N., Morimoto, T. & Tokura, Y. 外尔材料的输运、磁学和光学性质。《自然综述：材料》**5**, 621 (2020).

[6] Hasan, M. Z. 等. 拓扑量子物质中的韦尔费米子、狄拉克费米子与高重手征费米子。《自然综述：材料》6, 784 (2021).[7] Ma, Q., Grushin, A. G. 和 Burch, K. S. 非线性电磁聚光灯下的拓扑与几何。《自然·材料》20, 1601 (2021).[8] Orenstein, J. 等. 通过非线性光学响应探究量子材料的拓扑与对称性。《凝聚态物理年度评论》12, 247 (2021).[9] Lv, B. Q., Qian, T. 和 Ding, H. 三维拓扑半金属的实验研究视角。《现代物理评论》93, 025002 (2021).[10] Bao, C. 等. 二维材料和拓扑材料中的光诱导涌现现象。《自然综述：物理》4, 33-32 (2022).[11] Xue, H., Yang, Y. 和 Zhang, B. 拓扑声学《自然综述：材料》7, 974 (2022).[12] McIver, J., Hsieh, D., Steinberg, H., Jarillo-Herrero 和 Gedik, N. 利用光偏振调控拓扑绝缘体中的光电流。《自然·纳米技术》7, 96 (2012).[13] Wu, L. 等. 三维拓扑绝缘体中的量子化法拉第旋转与克尔旋转及轴子电动力学。《科学》354, 1124 (2016).[14] Chan, C.-K., Lindner, N. H., Refael, G. 和 Lee, P. A. 韦尔半金属中的光电流。《物理评论B辑》95, 041104 (2017).[15] Ma, Q. 等. 直接光学探测拓扑半金属中的Weyl费米子手征性。《自然·物理》13, 842 (2017).[16] Wu, L. 等. 过渡金属单磷族化物Weyl半金属中的巨大各向异性非线性光学响应。《自然·物理》13, 350 (2017).[17] Xu, S.-Y. 等. 单层拓扑绝缘体 WTe_2 中可电切换的贝里曲率偶极矩。《自然·物理》14, 900 (2018).[18] Yin, J. 等. 有能隙双层石墨烯中可调控的巨大谷选择性霍尔效应。《科学》375, 1398-1402 (2022).[19] Ma, C. 等. 可调莫尔′量子几何实现的智能红外传感。《自然》604, 266-272 (2022).[20] Xu, S.-Y. 等. 外尔费米子半金属及拓扑费米弧的发现。《科学》349, 613 (2015).[21] Lv, B. Q. 等. 韦尔半金属 TaAs 的实验发现。《物理评论X》5, 031013 (2015).

[22] de Juan, F., Grushin, A. G., Morimoto, T. & Moore, J. E. 韦尔半金属中的量子化圆偏光生伏打效应。《自然·通讯》8, 1 (2017).[23] Chang, G. 等. RhSi 中的非常规手性费米子与大尺度拓扑费米弧。《物理评论快报》119, 206401 (2017).[24] Chang, G. 等. 手性晶体的拓扑量子性质。《自然·材料》17, 978 (2018).[25] Flicker, F. 等. 多重费米子的手性光学响应。《物理评论B辑》98, 155145 (2018).[26] Sanchez, D. S. 等. 具有螺旋面弧量子态的拓扑手性晶体。《自然》567, 500 (2019).[27] Zhao, R. 等. 在 CoSi 中观测到具有长费米弧的非常规手性费米子。《自然》567, 496 (2019).[28] Takane, D. 等. 在 CoSi 中观测到具有大拓扑荷的手性费米子及相关费米弧表面态。《物理评论快报》122, 076402 (2019).[29] Schr¨oter, N. B. M. 等. 具有多重能带交叉和长费米弧的手性拓扑半金属。《自然·物理》15, 759 (2019).[30] Cochran, T. A. 等. 费米弧量子阶梯。预印本见 arXiv 2004.11365 (2020).[31] Rees, D. 等. 手性外尔半金属 RhSi 中螺旋度依赖光电流。《科学进展》6, eaba0509 (2020).[32] Ni, Z. 等. 手性多重半金属 RhSi 中的线性与非线性光学响应。《npj量子材料》5, 1 (2020).[33] Ni, Z. 等. 手性多重半金属 CoSi 中巨大的拓扑纵向圆偏光生伏打效应。《自然·通讯》12, 1 (2021).[34] Sanchez, D. S. 等. 拓扑手性晶体中的螺旋面弧范霍夫奇点。预印本见 arXiv 2108.13957 (2021).[35] Zhang, Y. 等. 基于第一性原理研究外尔半金属中的光生伏打效应。《物理评论B辑》97, 241118 (2018).[36] Ma, J. 等. II型外尔半金属的非线性光响应。《自然·材料》18, 476 (2019).[37] Osterhoudt, G. B. 等. I型外尔半金属中的巨大中红外体光伏效应。《自然·材料》18, 471 (2019).[38] Liu, J., Xia, F., Xiao, D., Garcia de Abajo, F. J. & Sun, D. 用于高性能光探测的半金属。《自然·材料》19, 830 (2020).

[39] Yuan, H. 等. 在 WSe_2 中生成并电控自旋-谷耦合圆形光伏电流。《自然·纳米技术》**9**, 851 (2014).[40] Chang, G. 等. 拓扑手性半金属中来自表面费米弧的非常规光电流。《物理评论快报》**124**,166404 (2020).[41] Soluyanov, A. A. 等.II型外尔半金属。《自然》**527**, 495 (2015).[42] Huang, S.-M. 等. 过渡金属单磷族化物 TaAs 类中的一种具有表面费米弧的外尔费米子半金属。《自然·通讯》**6**, 1 (2015).[43] Weng, H., Fang, C., Fang, Z., Bernevig, B. A. & Dai, X. 非中心对称过渡金属单磷化物中的外尔半金属相。《物理评论*X*》**5**, 011029 (2015).

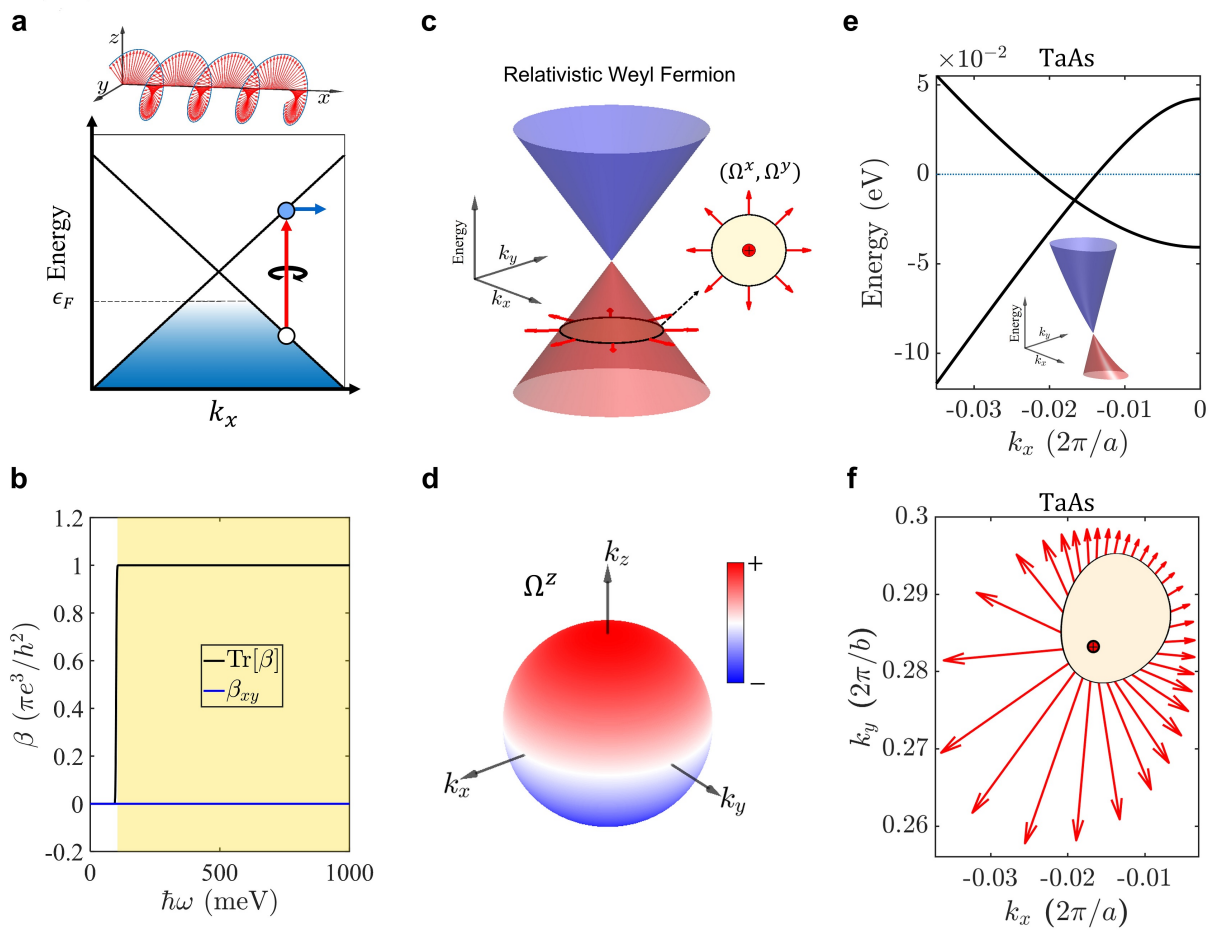


图 1. **来自各向同性外尔费子的圆偏振光电流效应。(a)** 顶部：圆偏振光示意图

激光。底部：相对论性外尔费米子的圆偏振光电流效应示意图。电子（蓝色实心圆）在圆偏振激光（红色箭头）的作用下从导带激发至价带，从而产生注入电流（蓝色箭头）。费米能级以下的态（$\epsilon_F = -50$ meV）以蓝色阴影标示，表示电子占据。 **(b)** 注入电流的迹和非对角分量 β 根据面板 a所示的各向同性相对论性外尔费米子计算得出。圆偏振光电流效应张量的所有非对角分量均为零，而 β 的迹是量子化的。**(c)** 左：各向同性外尔费米子的三维能带结构。右：黑色费米轮廓处的面内贝里曲率分量（Ω^x,Ω^y）。红色箭头表示贝里曲率场的流向。 **(d)** 相对论性外尔费米子费米面上的贝里曲率分量 Ω^z 的分布。Ω^z 沿 z方向为奇函数，而沿 x 和 y方向为偶函数。 **(e)** TaAs 材料中外尔费米子的能带结构。在真实材料中，哈密顿量中的倾斜项和翘曲项会使外尔锥发生形变。插图显示固定 k_z 动量时的三维能带结构。 **(f)** 费米轮廓及其上的贝里曲率分布（Ω^x,Ω^y）相对于外尔点是不对称的。 14

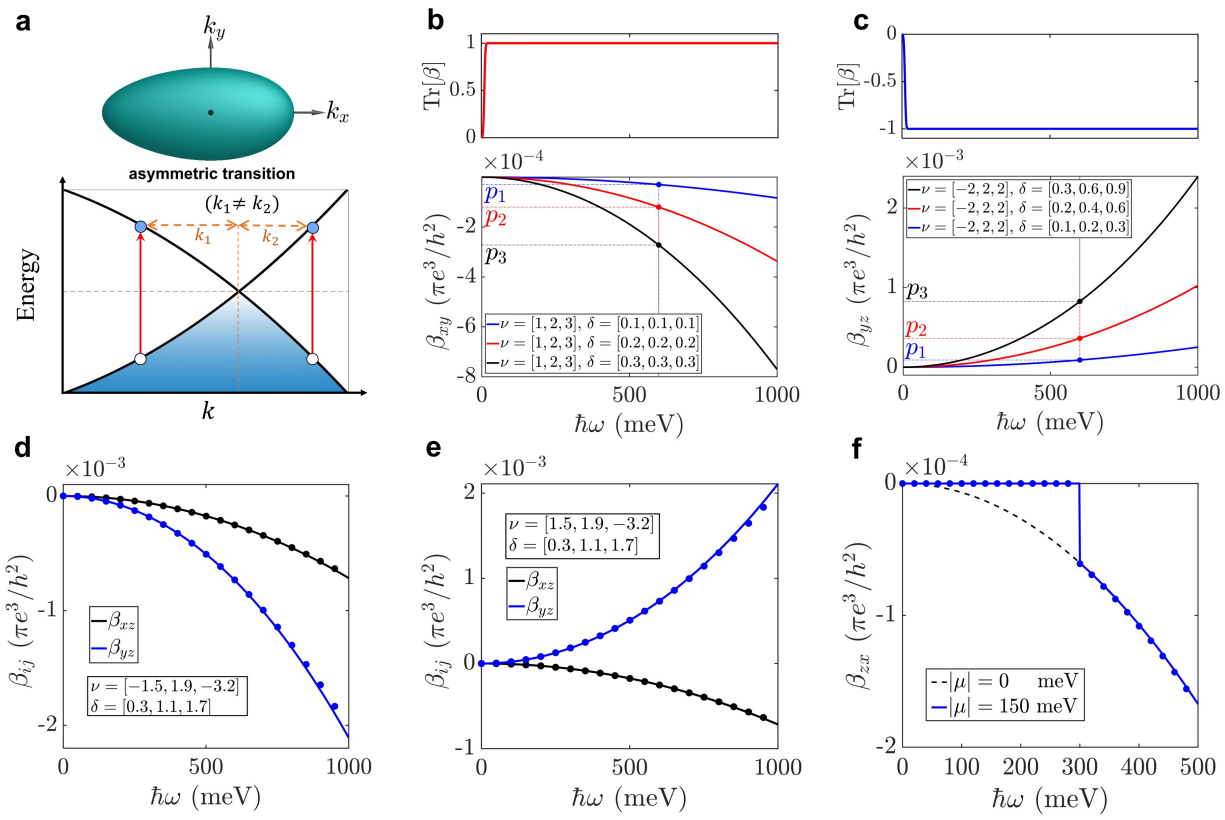


图 2. **二次修正导致的外尔费米子横向圆偏振光电流效应。(a)**上图：具有翘曲修正项的外尔费米子费米面。在这种情况下，费米面是一个中心偏离节点的不对称锥形椭圆，因此可能发生各向异性激发。底部：含翘曲修正项的外尔费米子示意图。对于能谱的两个部分，在相同光子能量下，圆偏振激光（红色箭头）使电子（蓝色实心圆）从导带跃迁至价带的过程，在动量区域 k ($k_1 \neq k_2$) 中是不对称的。(b) 顶部：正手征性外尔节点的圆偏振光电流效应的迹，其以 $\pi e^3/h^2$ 为单位量子化。底部：在面板 b 顶部所示的相同条件下， β_{xy} 的横向圆偏振光电流效应。这里 $p_1 = -2.997 \times 10^{-5}$、 $p_2 = -1.202 \times 10^{-4}$ 和 $p_3 = -2.720 \times 10^{-4}$。(c) 顶部：负手征性外尔节点的圆偏振光电流效应的迹，其以 $-\pi e^3/h^2$ 为单位量子化。底部：在面板 c 顶部所示的相同条件下， β_{yz} 的横向圆偏振光电流效应。这里 $p_1 = 9.009 \times 10^{-5}$、$p_2 = 3.629 \times 10^{-4}$ 和 $p_3 = 8.266 \times 10^{-4}$。根据我们提出的公式5得到的圆偏振光电流效应张量非对角分量（虚线），以及直接根据公式1进行数值计算的结果（实线）：(d) $\nu = [-1.5, 1.9, -3.2]$, 以及 (e) 在 $\delta = [0.3, 1.1, 1.7]$ 固定时的 $\nu = [1.5, 1.9, -3.2]$。

图 2. 我们提出的简单拟合函数与根据式1计算得到的圆偏振光电流效应张量非对角分量的数值计算结果相吻合。**(e)** 在有限掺杂下，特征光子能量处横向圆偏振光电流效应的跃变陡峭程度 $2|\mu|$取决于费米能。

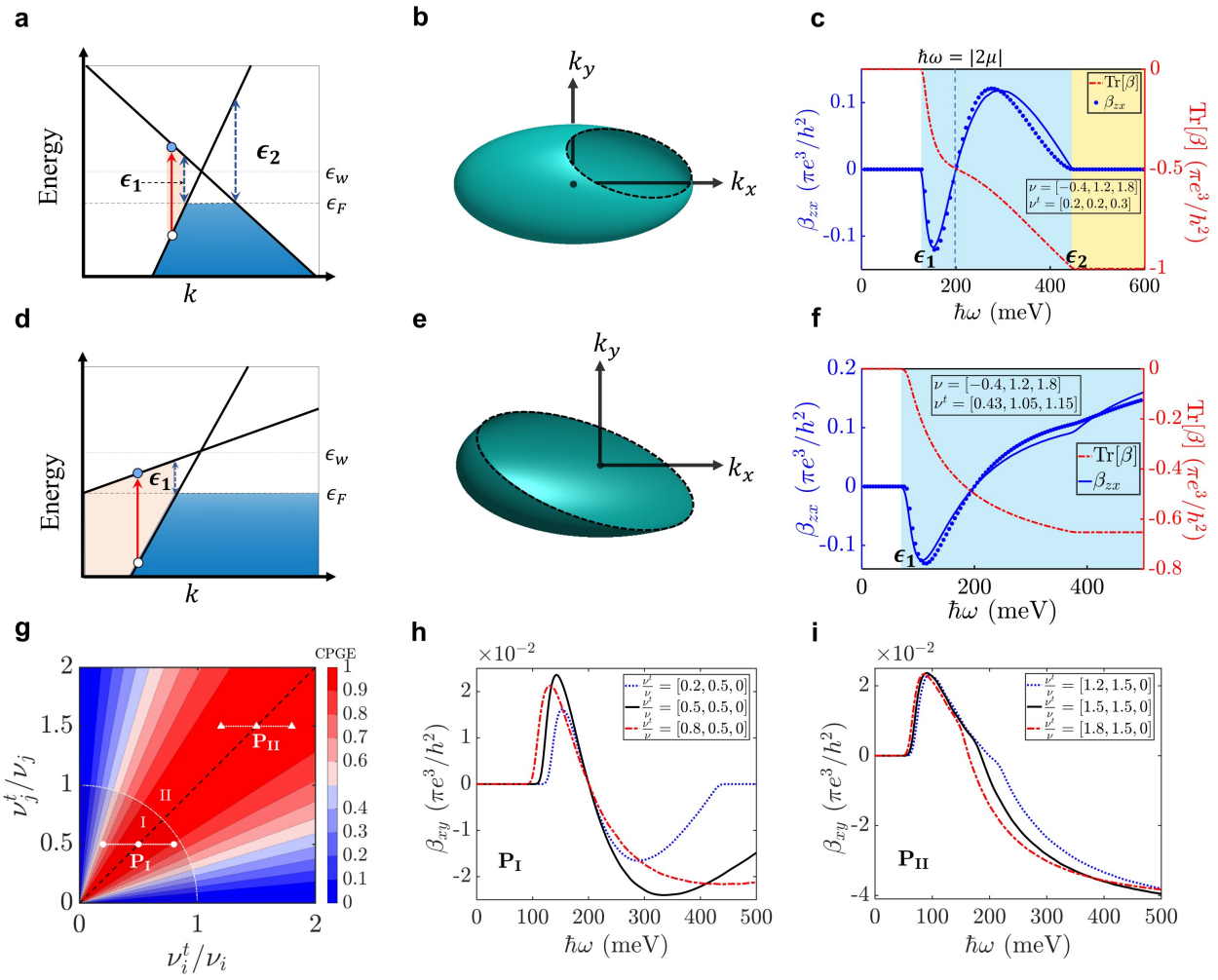


图 3。 **外尔费米子因倾斜速度产生的横向圆偏振光电流效应。(a)** 示意图双能带系统，其简并对应于一个I型外尔费米子。对于 $|\epsilon_F| > \epsilon_{\mathcal{W}}$，有限尺寸费米面的下边缘和上边缘出现在光子能量区间 $\epsilon_1 < \hbar\omega < \epsilon_2$内，其中 ϵ_1 (ϵ_2)分别给出光学吸收的下边缘（上边缘）。红色箭头表示光学吸收区域内一个具有代表性的光子诱导电子跃迁（实心蓝色圆点），该区域以浅珊瑚色突出显示。它对应于仅部分光谱受到泡利阻塞的跃迁。**(b)** 该光子能量区间（$\epsilon_1 < \hbar\omega < \epsilon_2$）内的有限尺寸费米面。**(c)** 根据我们提出的公式（式7，虚线）以及对韦尔半金属模型直接进行数值计算（式1，实线）得到的圆偏振光电流效应张量迹和非对角分量；该模型的化学势为 $\mu = -100$ meV。**(d)** 双能带系统示意图，其简并对应于一个II型外尔费米子。**(e)** 各向异性能量激发区域（$\hbar\omega > \epsilon_1$）内的有限尺寸费米面。

图3。(f) 化学势为 $\epsilon_F = -100$meV时，II型韦尔半金属模型的圆偏振光电流效应张量迹和非对角分量。发生各向异性激发时，圆偏振光电流效应张量的非对角分量不为零。(g)横向圆偏振光电流效应的巨大峰值β_{ij}的相图，其随ν_j^t/ν_j 和ν_i^t/ν_i变化。单位已归一化。(h) 和(i) 沿着I型和II型情况下两条等长路径的非对角圆偏振光生电流效应 β_{xy}。

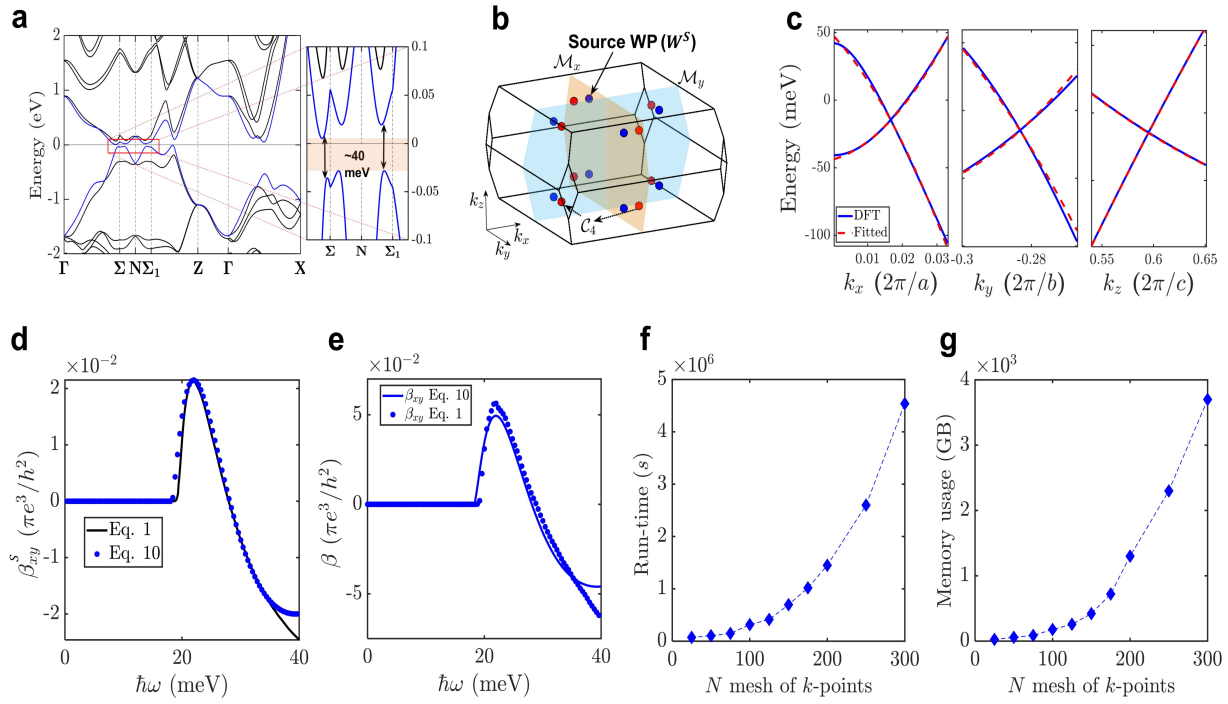


图 4. A　pplicati 应用于韦尔半金属 TaAs。**(a)**TaAs 的密度泛函理论计算能带结构在密度泛函理论计算中考虑自旋轨道耦合。右侧面板显示了考虑自旋轨道耦合时沿 Σ-N-Σ_1 方向、费米能附近的能带结构。**(b)**考虑自旋轨道耦合时，TaAs 材料的第一布里渊区中有十六个外尔点，记为 W_2 它们由两个镜面对称面联系起来，分别是 $\mathcal{M}_x$ 和 $\mathcal{M}_y$。**(c)** 将模型方程中的能带能量拟合到式 9 所示的 TaAs 外尔点附近的密度泛函理论能带结构。其中 $\nu^t = [-0.5534, -0.4787, 0.9152]$，$\nu = [2.0677, 1.7456, -1.8011]$，以及 $\delta = [18.4201, 7.7985, 3.0199]$。圆偏振光电流效应张量的非对角分量，**(d)** β^S_{xy} 根据我们提出的公式（虚线）计算的结果，以及对**(b)** 中源外尔点直接进行数值计算的结果（实线）。β^S_{yx} 结果见补充材料第五节。**(f)** 对 TaAs 进行直接数值计算（实线），并基于源外尔点数据重构圆偏振光电流效应张量的全部非对角分量（β_{xy}）（虚线）。**(f)** 计算横向圆偏振光电流谱的运行时间，以及**(g)** 内存使用量随积分网格大小 N^3 的变化。