采用一般变换矩阵进行能带展开：从代码实现到光电子能谱解读

Oleg Rubel, [1,*] Jean-Baptiste Moussy, [2] Paul Foulquier, [2,3] 和 V´eronique Brouet[3,†]

[1]材料科学与工程系，麦克马斯特大学，加拿大安大略省汉密尔顿市西主街*1280*号，邮编*L8S 4L8*

[2]巴黎-萨克雷大学´，法国原子能和替代能源委员会，法国国家科学研究中心，*SPEC*，*91191*，吉夫叙尔伊韦特，法国

[3]巴黎-萨克雷大学´，法国国家科学研究中心，固体物理实验室，*91405*，奥赛，法国。（日期：2023年1月10日）

arXiv:2301.02696v1 [physics.comp-ph] 6 Jan 2023

摘要

将超胞能带结构展开到原胞布里渊区，对于理解结构畸变、无序、缺陷和固溶体对材料电子结构的影响至关重要。在解读角分辨光电子能谱（ARPES）测量结果时，能带展开同样不可或缺。我们介绍了对 fold2Bloch 软件包的扩展，通过实现任意变换矩阵来建立原胞与超胞之间的关系。这项改进使我们能够克服超胞构造仅限于缩放原胞晶格矢量的局限。现在可以在原胞与常规晶胞之间进行变换，也可以纳入旋转。fold2Bloch 以 FORTRAN 代码形式公开发布于 GitHub 仓库。它与全电子全势 WIEN2k 以及赝势 VASP 密度泛函理论软件包兼容。fold2Bloch 还配备了额外的前处理和后处理工具，可帮助生成超胞中的 k 点（使其在展开后落到原胞布里渊区中所需的路径上），并绘制展开能带结构。我们选取 Sr_2IrO_4 作为示例，首次展示其正确展开的能带结构，并将其与 ARPES 测量结果直接对比。此外，我们还阐释并讨论了能带展开对于解读 $SrIrO_3$ ARPES 数据的关键意义，并展望其应用前景。

I. 引言

由电子结构计算得到的能带色散关系 $E(k)$ 提供了有关金属费米面、半导体中的直接/间接跃迁、有效质量等信息。当周期性受到扰动（例如，固溶体、缺陷、磁序）时，布里渊区（BZ）缩小，能带发生折叠。因此， $E(k)$ 变得模糊且难以解读。

即使周期性受到形式上的扰动，仍可通过一种称为“能带展开”的 k 谱分解，在原胞的布里渊区中恢复有效能带结构。能带展开已有诸多应用实例。重要的里程碑包括：在紧束缚近似下描述非周期固体 [1–3], 固溶体的电子结构

* O.R. 邮箱：rubelo@mcmaster.ca，ORCID：0000-0001-5104-5602

† V.B. 邮箱：veronique.brouet@u-psud.fr

[4–6] 采用平面波基组的赝势方法 [7–9]，以及利用第一性原理计算得到的万尼尔函数来解释角分辨光电子能谱（ARPES）实验 [10]。密度泛函理论（DFT）领域有多种公开的能带展开实现，例如 `BandsUP` [11, 12]、 `fold2Bloch` [13]、 `VASPKIT` [14]、 `vaspwfc` [15]。

能带结构展开最简单的情形，是将原胞实空间晶格矢量 $\mathbf{a}_i$ ($i = 1,2,3$)乘以整数 n_i 进行缩放，从而构造超胞 $\mathbf{a}_i$($n_i \in \mathbb{Z}^+$)。然而，这并未涵盖所有可能的情况。某些点阵是通过对原始结构单元进行旋转和缩放组合而构造的。例如常规晶胞与约化晶胞 [16, 17]，或钙钛矿结构中的八面体旋转和倾斜 [18]。Popescu 和 Zunger [9] 提出了一种更通用的能带展开方法，其中涉及变换矩阵。该方法已在 `BandsUP`、 `VASPKIT` 和 `vaspwfc` 中实现，但尚未在 `fold2Bloch` 中实现。

II. 方法

A. 晶格变换

按照参考文献 9 中的记号，我们用小写（大写）符号表示与原胞（超胞）相关的量。原胞实空间晶格矢量 $\mathbf{a}_i$ 到超胞晶格矢量 $\mathbf{A}_i$的变换可表示为 [19]

$$\mathbf{A}_i = \sum_{j=1}^{3} P_{ji}\, \mathbf{a}_j \quad (i = 1, 2, 3) \tag{1}$$

或者写成矩阵形式：

$$A = P^{\intercal}\, a, \tag{2}$$

其中，晶格矢量矩阵 A 和 a 的每一行都是一个矢量，每一列则是其笛卡尔分量（x, y, z），例如：

$$A = \begin{pmatrix} \mathbf{A}_1 \\ \mathbf{A}_2 \\ \mathbf{A}_3 \end{pmatrix} \equiv \begin{bmatrix} A_{11} & A_{12} & A_{13} \\ A_{21} & A_{22} & A_{23} \\ A_{31} & A_{32} & A_{33} \end{bmatrix}. \tag{3}$$

这里 P 给出了一个大小为 3×3 的变换矩阵，该矩阵符合《国际晶体学表》 [19] 推荐的约定（与 VESTA 结构相同

可视化软件 [20] 或毕尔巴鄂晶体学服务器 [21]，但与参考文献 9 不同）。变换矩阵通过求解线性方程（2）得到，结果为

$$P = (A\,a^{-1})^{\intercal}. \tag{4}$$

超胞到原胞的逆变换可通过逆矩阵 P^{-1} 得到

$$a = (P^{-1})^{\intercal}\,A. \tag{5}$$

原胞变换为超胞后晶胞体积的缩放由 [19] 给出

$$n_{\mathrm{v}} = \det(P), \tag{6}$$

这带来两个约束： P 必须正定，且 $P_{ij} \in \mathbb{Z}$，由此可得 $\det(P) \in \mathbb{Z}^{+}$。

倒易晶格矢量也使用 P 进行变换。根据关系式 $B = (A^{-1})$，超胞的倒易晶格矢量 $\mathbf{B}_i$ 可变换为原胞的倒易晶格矢量 $\mathbf{b}_i$，即 [19]

$$b = P\,B \tag{7}$$

反向变换则为

$$B = P^{-1}\,b. \tag{8}$$

请注意，与参考文献 9 中提出的转换方法不同（见其中的公式 (1) 和 (2)），将倒易晶格矢量转换为矩阵形式时，无需对 P 进行转置。

B. 能带展开

我们已在文献 13 中概述了一种能带展开方法，该方法用于通过简单缩放原胞构建超胞时的 `fold2Bloch` 实现。这里我们介绍其扩展版（更通用的版本）。

固体的密度泛函理论代码内部使用分数坐标表示波矢。这里˜ ˜我们用波浪号表示原始（超胞）分数坐标$\mathbf{k}$ （$\mathbf{K}$），其中每个矢量的分量范围为 0 到 1。波矢的笛卡尔分量可通过与倒易晶格矩阵相乘得到

$$\mathbf{k} = \tilde{\mathbf{k}}\,b \tag{9}$$

超胞$\mathbf{K}$也同理。

$\tilde{}$ $\tilde{}$倒易空间超胞$\mathbf{K}$ 到原始$\mathbf{k}$ 波矢（分数坐标）的变换由 [19]给出

$$\tilde{\mathbf{k}} = [\tilde{\mathbf{K}} + (m_1, m_2, m_3)]\, P^{-1} \mod 1. \tag{10}$$

对于 $m_i \in \mathbb{Z}$的所有可能组合，在原胞的第一布里渊区（图1）内生成的唯一$\mathbf{k}$ 点数量由体积比例（式（6））给出。图1b中的新（展开后）$\mathbf{k}$点构成原始网格$\mathbf{K} + \mathbf{G}$ 的两个子集$\mathbf{k}_1$（空心标记）和$\mathbf{k}_2$（红色），如图1a所示。由于所示示例中的体积变化为 $n_\mathrm{v} = 2$，因此形成了这两个子集。更一般地，子集性质表示为

$$\mathbf{k}_l + \mathbf{g} \subset \mathbf{K} + \mathbf{G} \quad (l = 1, \ldots, n_\mathrm{v}), \tag{11}$$

其中$\mathbf{G}(m_1, m_2, m_3) = m_1\mathbf{B}_1 + m_2\mathbf{B}_2 + m_3\mathbf{B}_3$ 以及$\mathbf{g}(m_1, m_2, m_3) = m_1\mathbf{b}_1 + m_2\mathbf{b}_2 + m_3\mathbf{b}_3$ 是平面波展开的公度矢量。

WIEN2k 中的波函数被分为两个区域：原子球和间隙区 [22]。间隙区使用平面波基组

$$\Psi^{(\mathrm{int})}_{\sigma,n,\mathbf{K}}(\mathbf{r}) = \sum_{\mathbf{G}} C_{\sigma,n,\mathbf{K}}(\mathbf{G})\, e^{i(\mathbf{K}+\mathbf{G})\cdot\mathbf{r}}, \tag{12}$$

其中 C 是波矢为$\mathbf{K}$、自旋通道为 σ、能带指标为 n的特定电子态的平面波系数。

新展开的 $\mathbf{k}$ 点的谱权重由平面波系数的子集 [9]计算得出

$$w_{\sigma,n}(\mathbf{k}_l) = \sum_{\mathbf{g}} |C_{\sigma,n,\mathbf{K}}(\mathbf{k}_l + \mathbf{g})|^2 \quad (l = 1, \ldots, n_\mathrm{v}). \tag{13}$$

权重经过归一化，使得

$$\sum_{l=1}^{n_\mathrm{v}} w_{\sigma,n}(\mathbf{k}_l) = 1 \tag{14}$$

对于自旋量子波函数，自旋向上和自旋向下分量的权重会混合

$$w_n(\mathbf{k}) = \alpha^2 w_{\uparrow,n}(\mathbf{k}) + \beta^2 w_{\downarrow,n}(\mathbf{k}), \tag{15}$$

其中 α 和 β 是自旋量子波函数（$\alpha^2 + \beta^2 = 1$）的分量。该结果与 Medeiros等人 [12], 提出的部分谱权重分解相似，但还额外纳入了各自旋通道对波函数的相对贡献。

C. 电子结构计算

所有电子结构计算均使用 WIEN2k 密度泛函理论软件包 [22, 23]完成。相关参数列于表 I。对于 Sr_2IrO_4，我们采用 Perdew、Burke 和 Ernzerhof [24]（PBE）交换-相关泛函，并对 Ir-d 电子施加现场 Hubbard 修正U [25] 。所有计算均纳入了自旋轨道耦合。仅在 Sr_2IrO_4, 的计算中考虑了自旋极化；我们采用了与文献 26（图 2d）相同的共线反铁磁有序，并以每个 Ir 位点 ± 1玻尔磁子（μ_B）的磁矩作为初始值。

D. 实现与执行流程

WIEN2k：首先，我们初始化计算，并以 `case.struct` 结构文件为输入完成自洽场（SCF）循环，以获得自洽势和电荷密度。计算收敛后，所有必要文件都会保存在 `SOC` 文件夹中。详细的工作流程见补充信息（SI）部分。

~**Utils/fold.m**：接下来，我们使用 Octave/MATLAB 脚本生成超胞布里渊区内的折叠后的 **K** 点列表。该脚本以原胞布里渊区中所需的**k** 点路径、路径各段的中间点数以及变换矩阵 P 为输入。~

```
$ octave fold.m
```

折叠通过以下矩阵乘积实现 [19]

$$\tilde{\mathbf{K}} = \tilde{\mathbf{k}}\, P \mod 1. \tag{16}$$

~生成的唯一**K** 点以 WIEN2k 原生格式存储在 `case.klist band` 文件中，每个 **k** 点由三个整数表示，并带有一个公用整数除数。需要注意 WIEN2k 中用于解读 `case.klist band` 文件里 **k** 点坐标的约定。对于 F、B、CXY、CXZ 和 CXZ 正交晶格，采用常规点阵的布里渊区；对于其他点阵类型（P、H、R、CXZ 单斜晶系），则采用原始点阵的布里渊区。这些特殊情况会影响式 (3) 中超胞晶格矢量A 的选择，以及根据式 (4) 构造 P 矩阵。在实际中，我们预计大多数用户会使用 P 型超胞，因为无序/缺陷会破坏对称性。

WIEN2k：现在，我们为 case.klist band 文件中的 k 点列表生成本征值和本征矢量（波函数或矢量文件）。我们使用上一个自洽场步骤之后保存在 SOC 文件夹中的文件。

```
$ x lapw1 -band -up [-p]$
 x lapw1 -band -dn [-p]$
 x lapwso -up [-orb] [-p]
```

在进行密度泛函理论+U 计算时，会启用 -orb 开关。这里我们生成能带展开所必需的文件： case.vectorso[up/dn] （波函数和能量本征值）以及 case.normso[up/dn]（自旋子分量 α^2 和 β^2）。

fold2Bloch：fold2Bloch 是一款 FORTRAN 代码，可使用英特尔或 GNU FORTRAN 编译器进行编译。它以波函数、自旋子分量和变换矩阵 P 作为输入参数

```
$ fold2Bloch -so case.vectorsoup[_1] case.vectorsodn[_1]
...  case.normsoup[_1] case.normsodn[_1]
...  "'P11 P12 P13:P21 P22 P23:P31 P32 P33'"
```

并生成一个 case.f2b 文件。如果 WIEN2k 计算以 k 并行模式运行（[-p] 选项），则每个并行流的输出向量文件和范数文件都会标记为 XX_。这些文件可以分别处理，然后将输出合并到一个 case.f2b文件中。下面给出了输出文件的示例内容

```
    k_1         k_2         k_3        E (Ry)        w...
0.000000 0.000000 0.000000 0.393800 0.001619 0.000000
0.000000 0.250000 0.393800 0.000001 0.000000 0.000000
0.500000 0.393800 0.487296 0.000000 0.000000 0.750000
0.393800 0.000001 0.500000 0.500000 0.000000 0.393800
0.000000 0.500000 0.500000 0.250000 0.393800 0.255542
0.500000 0.500000 0.500000 0.393800 0.000000 0.500000
0.500000 0.750000 0.393800 0.255542 0.000000 0.000000
0.000000 0.394518 0.374261 0.000000 0.000000 0.250000
0.394518 0.000001 0.000000 0.000000 0.500000 0.394518
0.001956
```

0.000000 0.000000 0.750000 0.394518 0.000001
0.500000 0.500000 0.000000 0.394518 0.000000
0.500000 0.500000 0.250000 0.394518 0.311889
0.500000 0.500000 0.500000 0.394518 0.000000
0.500000 0.500000 0.750000 0.394518 0.311893

...

这里可以看到变换矩阵为 $P = [1, \bar{1}, \bar{2}$; 1、1、 $\bar{2}$, $0, 0, 4]$且体积比例为 $n_{\mathrm{v}} = 8$ 时的能带展开结果。图中显示了两组本征值，它们各自展开为原胞布里渊区中的八个新 k 点（分数坐标）。尽管这两个本征值都属于超胞布里渊区中的 Γ 点，但展开后，第一个没有明显的 Γ 特征（仅约 0.16%），而第二个本征值保留了约 37% 的其 Γ 特征。

Utils/ubs bmp.m：此 Octave 脚本用于生成二进制文件 `case.f2b.bin`~，以进行能带结构绘图。输入包括 `case.f2b` 文件、原胞布里渊区中所需的k 路径（必须与 `fold.m` 中用作输入的路径一致）、超胞的倒易晶格矢量（可按列从 `case.outputkgen` 文件中读取，之后在脚本中转置）、 `case.scf` 文件中的费米能，以及能量和 k 空间中高斯函数的展宽。

```
$ octave ubs bmp.m
```

能量展宽和 k 空间展宽的合理取值约为能量范围和所选能带结构绘图 k 路径长度的 1/50。执行结束时会打印 `XTICKS` and`KLABEL` 向量。需要记下这些向量，并在下一阶段使用。

Utils/f2b-band-structure.plt：最后，使用 Gnuplot 和输入二进制文件 `case.f2b.bin` 绘制展开能带结构。

```
$ gnuplot f2b-band-structure.plt
```

Gnuplot 脚本会整合来自 `XTICKS` and `KLABEL` 向量的数据，用于标注路径上的高对称点，并生成出版级图表（`case.eps`）。

E. 实验细节

Sr_2IrO_4 的实验结构是在 SOLEIL 同步辐射装置的 Cassiop´ee 光束线上，使用 SCIENTA R-4000 分析器通过角分辨光电子能谱测得的，整体

能量分辨率优于 15 meV。温度为 20 K，光子能量设为 100 eV，并采用了位于包含 Γ M 的平面内的线偏振。样品采用自助熔剂法制备，如此前所述 [27, 28]。

我们采用脉冲激光沉积，在 $SrTiO_3$（001）衬底上生长了 $SrIrO_3$ 薄膜。使用三倍频 Nd:YAG 激光器（$\lambda = 355$ nm，$f = 2.5$ Hz，脉冲持续时间为 15 ns）聚焦于通过固相合成制备的多晶 $SrIrO_3$ 靶材上。根据参考文献 29 中描述的流程处理衬底表面，以获得均匀的 TiO_2 表面终止。沉积时，衬底温度为 $T = 600$ ℃，氧分压为 $P = 2.5 \times 10^{-1}$ mbar，并通过原位反射式高能电子衍射进行监测。随后，在相同氧分压下将薄膜冷却至室温，以补偿任何氧空位。最后，我们使用 Br¨uker D8 advance 衍射仪，通过 X 射线衍射和反射率测量对薄膜进行了全面的结构和物理表征，并在 SOLEIL 同步辐射的 SIXS 光束线上进行表面衍射测量，同时进行了原子力显微镜和电子输运测量；结果表明，薄膜的特征和性质与文献中的先前报道相似 [30–32]。

III. 结果与讨论

A. Sr_2IrO_4：理论计算

Sr_2IrO_4 的结构取自 Springer Materials [33]（数据集 ID sd 1945591）。原始结构为体心四方，并包含 IrO_6 八面体的倾斜（图 2a–d）。磁序进一步将对称性降低为含有 8 个铱原子的四方晶胞。其晶格矢量矩阵（$^\circ$A）为

$$A = \begin{bmatrix} 5.485 & 0 & 0 \\ 0 & 5.485 & 0 \\ 0 & 0 & 25.775 \end{bmatrix}. \tag{17}$$

为进行验证，我们还通过消除八面体倾斜和磁序构建了一个理想化结构。其基本结构单元（一个含 1 个铱原子的体心四方原胞）

is s如图 2e 所示。相应的原始晶格矢量矩阵为

$$a = \begin{bmatrix} A_1/2 & -A_2/2 & 0 \\ A_1/2 & A_2/2 & 0 \\ A_1/2 & 0 & A_3/4 \end{bmatrix}. \tag{18}$$

根据式 (4)，我们得到变换矩阵

$$P = \begin{bmatrix} 1 & -1 & -2 \\ 1 & 1 & -2 \\ 0 & 0 & 4 \end{bmatrix}, \tag{19}$$

该矩阵建立了 1-Ir 原胞与 8-Ir 超胞（无畸变）之间的关系。结构文件（WIEN2k 原生格式）可在补充信息部分找到，并可使用 XCrySDen [34]或 VESTA [20]进行可视化。

8-Ir 和 1-Ir 晶胞的布里渊区分别如图 3a、b 所示。绘制能带结构时，我们选择了 Γ–M –X $-\Gamma$路径。由于我们对体心四方原始晶格矢量采用了非常规的选取方式（见《国际晶体学表》中的表 9.1.7.2， tI 体心四方布拉菲晶格 [35]），因此在将 k 点坐标从常规晶胞映射到原胞时（图 3b），应格外谨慎，以确保坐标与所选晶格矢量定义（表 II）相符。

为了进行验证，我们首先需要计算铱O_6 八面体不发生 倾斜时的能带结构。这样便可直接比较含 8 个铱原子的晶胞与含 1 个铱原子的原始体心四方晶胞。在 PBE 理论水平下进行此项比较较为方便，因为这会得到能带结构更简单的非磁性解（图 4a）。费米能附近的能带源于 Ir-d 电子：从 Γ 附近开始的色散能带对应于 $d_{x^2-y^2}$ 轨道；其余能带则源于 t_{2g} 态（ d_{xy} 、 d_{yz} 和 d_{xz} 轨道）； d_{z^2} 轨道属于位于更高能量、超出关注能量范围的 e_g 态。

图 4b 显示了未发生八面体倾斜的 8-Ir 超胞能带结构。能带折叠使该能带结构难以辨认。图 3c 有助于解释高对称性 k 点处的能带折叠（带撇号的指标表示超胞）。Γ 点和 X 点处的本征值都折叠到超胞的 Γ' 。M 点处的本征值落入 X′。沿 Γ'–X′ 线段的狄拉克型能带交叉是折叠造成的伪象，在原胞中并不存在

中。展开后的能带结构与原胞能带结构完全相同（图 4a、c），这使我们对所采用的方法及其实现充满信心。

Sr_2IrO_4 的实际结构包含 IrO_6 八面体的倾斜。这些畸变会引起能带结构的扰动，借助 `fold2Bloch` 的新功能可以对此进行评估。具有八面体倾斜的 8-Ir 晶胞的展开能带结构（图5b）现在可以与图4c进行比较（两者均在 PBE 理论水平下计算）。最显著的变化是，旋转使 $d_{x^2-y^2}$ 与 d_{xy} 之间能够发生杂化，Sr_2RhO_4 [36] 中也存在这种情况。因此，新的 $d_{x^2-y^2}$ 态移至更高能量处（图5中不可见），而 d_{xy} 态现在被推至费米能以下，在 X 点费米能以下形成一个新的明亮“斑点”（图 5b）；该斑点由 Γ'' 展开而来，并在 Γ 处留下一个较弱的副本。有趣的是，M 点处的态不受这些畸变影响。

为考虑关联效应，我们为铱的 d 态加入了 $U_{\text{eff}} = 3$ eV 的 Hubbard 修正。我们选择 U_{eff} 的大小，使其能够重现实验带隙 0.5 eV [37, 38]。与 PBE 不同，PBE+U 更倾向于形成磁性解，每个铱位点的磁矩为μ(Ir) $\approx 0.24\mu_{\text{B}}$（为简明起见，图2d展示了沿 [001] 自旋量子化方向的磁序）。实验测得的 μ(Ir) 磁矩为 0.21 [26], 0.29 [39], 和 0.37 [40]。位点自旋向上和向下态之间出现了带隙，在 M 点和 ΓX 的中点处尤为明显（图5c–d）。

B. Sr_2IrO_4：与实验比较

图6(a)展示了沿 k 路径 Γ-M-X-Γ 的 ARPES谱强度，该数据取自我们的测量，测量时使用了能量为 100 eV 的光子，并采用沿 ΓM [27] 方向的线偏振。图6(b)用红色和蓝色的引导线勾勒出该图中观察到的不同能带，颜色对应其主要轨道特征，该特征由总电子角动量的有效值 J 表征，取值为$J = 1/2$ ($m_J = \pm 1/2$) 或 $J = 3/2$ ($m_J = \pm 1/2,\ \pm 3/2$)。这些数据与此前的若干报道相似 [28, 41, 42], ，更多详情亦可参见这些报道。

最强的能带是 X 点处的 $J = 3/2$ 能带（蓝色星号）。尽管它也应出现在 Γ处（该点在超胞中与 X 等价，见图 3(c)），但在那里几乎无法辨认。图 6(d) 的展开计算很好地再现了这一点：与 X 点相比，该能带在 Γ处的强度低得多。对测量结果的比较

以及沿 Γ 和 X 点的计算强度分别见图 6(c) 和 (e)。图 6(e) 中的角分辨光电子能谱是根据式 (15) 定义的离散谱权重 $w_n(\mathbf{k})$，以及展开能带结构在特定 k 点处的能量 $E_n(\mathbf{k})$ 计算得到的。采用了宽度为 $\sigma = 0.2$ eV 的高斯展宽。不过，这仍是一个非常粗略的近似，因为省略了其他相关细节（初态和末态晶体波函数的矩阵元、有限寿命效应、表面不连续性、多重散射 [43]）。这些矩阵元会进一步调制测得的强度，但计算很好地再现了定性差异。然而，在两种情况下，X 点的 $J = 3/2$ 能带与 M 点的 $J = 1/2$ 能带的相对位置差异很大。实验中，这些能带相距约 0.22 eV；而在计算中，M 点和 X 点的价带顶之间的能量差约为 0.11 eV（比较图 6(c) 和 (e) 中的红、蓝星号）。这一差异是由于有效自旋轨道耦合被低估所致；这一问题已在文献 [44, 45] 中受到关注并讨论。

$J = 1/2$ 能带是磁隙打开的那条能带 [42] （图 6(d)，红色箭头）。这条能带在 Γ M 点处清晰可见，但沿 MX 路径则弱得多；按理说，这两条路径在超胞中应当等价。这再次与理论计算相符。类似地，$J = 1/2$ 能带在 ΓX 点后半段的权重显著降低，在实验和计算中都是如此。请注意，由于 $J = 1/2$ 和 $J = 3/2$ 的相对位置未能被正确捕捉，它们交叉处因 $J = 1/2$ 与 $J = 3/2$杂化而导致的色散关系中断也发生了偏移。

其他能带在角分辨光电子能谱中更难分辨：它们要么在高束缚能处变得过宽，要么在这些实验条件下强度较低。不过，显然在 M 点的 -0.8 eV 处还存在另一条能带，并且在 X 点可以看到第二条能带的痕迹。它们以青色星号标出，与另一条 $J = 3/2$ 能带（$m_J = \pm 1/2$）吻合良好；该能带以 d_{xy} 权重为主，因此在角分辨光电子能谱中的截面较低 [28]。

C. $SrIrO_3$：展望

我们以 Sr_2IrO_4，为例说明能带展开过程。在这个例子中，与未旋转氧八面体的原胞之间的联系相对容易预判。然而，在更复杂的情况下，如果没有能带展开计算的帮助，要理解能带

结构和 c 并将其与角分辨光电子能谱数据进行比较，可能会完全无从下手。

一个非常有趣的例子是相关的三维铱酸盐 $SrIrO_3$。其结构如图 7(a) 所示。除了与 Sr_2IrO_4，类似的氧八面体面内旋转外，它还表现出氧八面体相对于 c 轴的倾斜，从而导致沿 k_z 的另一种折叠。由此得到的布里渊区如图 7(b) 所示；与 Sr_2IrO_4，的情况一样，它在 (k_x, k_y,0) 平面内旋转了 $45°$，但沿 k_z 的方向也缩小了一半。计算得到的能带结构呈半金属态，预计四条 $J = 1/2$ 折叠能带会在 U点 ($1/2$,0, $1/2$) 周围形成一条狄拉克节点线 [46]。由于关联氧化物中拓扑特征十分罕见，这一发现引起了广泛关注。然而，$SrIrO_3$ 的正交晶系结构仅在薄膜中稳定，因此引出了外延约束的作用以及拓扑特征在真实体系中能否保留等问题 [47]。因此，若能直接用角分辨光电子能谱观测这些特征，将十分有意义，但目前的情况尚无定论。迄今为止仅有的角分辨光电子能谱研究，要么在固定光子能量下进行 [48, 49], ，这可能无法精确确定 U 点的位置；要么使用较高的光子能量，此时能量分辨率较低 [50]。

这里仅简要说明展开计算如何帮助解读 $SrIrO_3$，的电子结构，更多细节将在以后发表。图 7(c) 显示了在光子能量为 100 eV 时，沿 ΓX 方向测得的色散图像。样品为生长在 $SrTiO_3$（001）衬底上的 $SrIrO_3$(001) 薄膜（厚度为 $t = 10.4$ nm）（为清晰起见，我们沿用此前对图 3(c) 中（k_x, k_y, 0）平面的标记方式，即 X 表示原胞二维布里渊区的角点，与图 3 类似）。角分辨光电子能谱图像相当简单：X 点处有一条显著的能带（在 Γ 处几乎不可见），类似于 Sr_2IrO_4 中的 $J = 3/2$，但整体上移了 0.2 eV；此外，还有一条能带在 ΓX 的中点处到达费米能级，类似于 Sr_2IrO_4 中的 $J = 1/2$，但整体上移了 0.15 eV。从定量角度看，与超胞中的原始计算结果进行比较通常会令人困惑，因为计算预测的能带结构要复杂得多[图 7(f)]。我们将展示能带展开如何简化这一图像。

我们使用 WIEN2k 计算了参考文献 51 的表 III 中所给结构的电子结构。其空间群为 Pbnm （ #62 ），参数列于表 III。对于 Sr_2IrO_4，，我们可以定义超胞的晶格矢量矩阵（ ˚A）以及虚构的

原胞，以及变换矩阵：

$$A = \begin{bmatrix} 5.597 & 0 & 0 \\ 0 & 5.568 & 0 \\ 0 & 0 & 7.892 \end{bmatrix}, \quad a = \begin{bmatrix} A_1/2 & -A_3/2 & 0 \\ A_1/2 & A_2/2 & 0 \\ 0 & 0 & A_3/2 \end{bmatrix}, \quad P = \begin{bmatrix} 1 & -1 & 0 \\ 1 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 2 \end{bmatrix} \tag{20}$$

未考虑库仑排斥 U，得到的半金属非磁态与实验结果一致 [52]。

假设该光子能量下的角分辨光电子能谱数据对应于 $k_z = 0$，我们在图 7(d,f) 中展示了有自旋轨道耦合和无自旋轨道耦合时计算得到的电子结构。显然，计算结果比角分辨光电子能谱数据复杂得多，因此极难判断应将哪些能带与实验结果进行比较。

能带展开后 [，图 7(e,g)], 中清晰地突显出一组三条能带，尽管它们的色散关系受到彼此相互作用的影响。通过轨道特征的颜色编码（修改了 `case.inq` 文件，将**a** 和**b** 旋转 45°，使其与铱–氧–铱键对齐），可以清楚地辨认出原始的 $d_{xz}/d_{yz}/d_{xy}$ 能带： [图 (e) 中无自旋轨道耦合时], 以及 $J = 1/2$ $J = 3/2$与自旋轨道耦合相互作用后 [图 (g) 中]。自旋轨道耦合诱导杂化能隙打开的位置以空心圆标出。显然，与计算结果相比，红色星号标记的能带在测量中的位置有显著差异。另一方面，测量中 X 点（蓝色星号）处的能带在 0.4 eV 范围内呈现出明确的抛物线形状，而计算结果中该色散关系顶部附近存在一个较大的自旋轨道耦合诱导能隙。与锶$_2$铱$_4$, 类似，我们可以预期，计算可能低估了有效自旋轨道耦合，这会改变两条能带的分裂以及它们交叉点的位置，进而造成色散关系中的断裂。此外，由于 d_{xy} 的形状对旋转十分敏感，可能需要调整结构才能获得正确的相互作用模式。这对 $k_z = 1/2$ 处狄拉克节点线的形成有极其重要的影响，但我们在此不作讨论。这个例子表明，只有借助能带展开方案，先基本理解不同能带的起源，才能通过调整结构更好地描述实验数据。

需要强调的是，折叠能带的强度也是衡量超胞形成机制相互作用强弱的敏锐指标；在此处，这种相互作用源于氧八面体的旋转。同样，折叠能带的强度所包含的信息

也曾被用于完善锶钌氧化物$_3$ 薄膜的结构研究 [53]。我们的测量中几乎看不到折叠能带，这表明耦合较弱。从拓扑学角度看，两个谱权重相差很大的能带交叉意味着什么，也是一个值得进一步研究的问题。

IV. 结论

将超胞能带结构展开到原胞布里渊区，对于理解结构畸变、无序、缺陷和固溶体对材料电子结构的影响至关重要。人们也认识到，能带展开对于角分辨光电子能谱（ARPES）测量结果的解读必不可少。我们通过实现一个任意变换矩阵，扩展了 `fold2Bloch` package，该矩阵用于建立原胞与超胞之间的关系。所选用的变换矩阵约定与《国际晶体学表》中的建议一致。这项改进使我们能够突破仅通过缩放原胞晶格矢量构造超胞所带来的限制。例如，现在可以在原胞与常规晶胞之间进行变换，也可以纳入旋转。更新后的 `fold2Bloch` package 可从 GitHub 仓库获取，代码采用 FORTRAN 编写。它可与全电子全势 WIEN2k 以及赝势 VASP 密度泛函理论软件包对接。 `fold2Bloch` 还配备了额外的预处理和后处理工具，可用于生成超胞中的 k点（使其在展开后落于原胞布里渊区中所需的路径上），并绘制展开能带结构。我们选取 Sr_2IrO_4 作为示例，首次展示了其正确展开的能带结构，并将其与 ARPES 测量结果直接对比。此外，我们还以展望的形式说明并讨论了能带展开对于解读 $SrIrO_3$ ARPES 数据的关键重要性。对于铱酸盐而言，尤其值得关注的是，ARPES 能够探测到 IrO_6 八面体倾斜在材料电子结构中留下的印记。ARPES 测量给了我们一个重要启示：微小的结构扰动既不会导致电子结构骤然改变，也不会重新定义相关的原胞布里渊区，这与结构形式对称性所预示的结果相反。

致谢

计算使用了由加拿大创新基金会通过 John R. Evans领袖基金支持的 Compute Canada 基础设施。ARPES 研究获得了法国国家研究署“SOCRATE”项目资助（项目编号：ANR-15-CE30-0009-01）。

---

[1] K. Niizeki 和 T. Akamatsu，二十面体准晶倒易空间中的特殊点及电子的准色散关系，《物理学杂志：凝聚态物质》**2**，2759（1990）。

[2] T. Kosugi、H. Nishi、Y. Kato 和 Y.-i. Matsushita，《电子能谱的无周期展开方法》，日本物理学会杂志**86**，124717（2017）。[3] S. G. Mayo、F. Yndurain 和 J. M. Soler，《简易能带展开》，《物理学杂志：凝聚态物质》**32**，205902（2020）。[4] T. G. Dargam、R. B. Capaz 和 B. Koiller，《包络函数近似中的无序与尺寸效应》，《物理评论B》**56**，9625（1997）。[5] T. B. Boykin 和 G. Klimeck，《紧束缚计算中区折叠概念的实际应用》，《物理评论B》**71**，115215（2005）。[6] T. B. Boykin、N. Kharche、G. Klimeck 和 M. Korkusinski，《由紧束缚超胞计算得到的半导体合金近似能带结构》，《物理学杂志：凝聚态物质》**19**，036203（2007）。[7] L.-W. Wang、L. Bellaiche、S.-H. Wei 和 A. Zunger，《合金电子态的多数表征》，《物理评论快报》**80**，4725（1998）。[8] V. Popescu 和 A. Zunger，《随机合金的有效能带结构》，《物理评论快报》**104**，236403（2010）。[9] V. Popescu 和 A. Zunger，《从合金和杂质的超胞计算中提取 E 与 k 有效能带结构》，《物理评论B》**85**，085201（2012）。[10] W. Ku、T. Berlijn 和 C.-C. Lee，《第一性原理能带结构的展开》，《物理评论快报》**104**，216401（2010）。

[11] P. V. C. Medeiros、S. Stafstr¨om 和 J. Bj¨ork，《外部与内部扰动对石墨烯电子结构的影响：通过能带展开保留有效原胞能带结构》，《物理评论B》**89**，041407（2014）。[12] P. V. C. Medeiros、S. S. Tsirkin、S. Stafstr¨om 和 J. Bj¨ork，《旋量波函数及一般算符期望值的展开：引入展开密度算符》，《物理评论B》**91**，041116（2015）。[13] O. Rubel、A. Bokhanchuk、S. J. Ahmed 和 E. Assmann，《无序固体的能带结构展开：从束缚态到高迁移率凯恩费米子》，《物理评论B》**90**，115202（2014）。[14] V. Wang、N. Xu、J.-C. Liu、G. Tang 和 W.-T. Geng，《VASPKIT：一个便于使用的界面，可利用 VASP 代码进行高通量计算与分析》，计算物理通讯**267**，108033（2021）。[15] Q. Zheng，PyVaspwfc（2022），网址：https://github.com/QijingZheng/VaspBandUnfolding。[16] B. Gruber，《国际晶体学表》（Springer，2006），第4版，第756–760页，章节：点阵的进一步性质。[17] P. M. de Wolff，《国际晶体学表》（Springer，2006），第4版，第750–755页，章节：约化基底。[18] A. M. Glazer，《钙钛矿中倾斜八面体的分类》，晶体学报B辑**28**，3384（1972）。[19] H. Arnold，《国际晶体学表》（Springer，2006），第4版，第78–85页，章节：坐标系变换（晶胞变换）。[20] K. Momma 和 F. Izumi，《用于晶体、体积及形貌数据三维可视化的 VESTA3》，应用晶体学杂志**44**，1272（2011）。[21] M. I. Aroyo、D. Orobengoa、G. de la Flor、E. S. Tasci、J. M. Perez-Mato 和 H. Wondratschek，《毕尔巴鄂晶体学服务器上的布里渊区数据库》，晶体学报A辑**70**，126（2014）。[22] P. Blaha、K. Schwarz、G. K. H. Madsen、D. Kvasnicka、J. Luitz、R. Laskowski、F. Tran 和 L. D. Marks，*WIEN2k*：用于计算晶体性质的增广平面波加局域轨道程序（维也纳工业大学，奥地利，2018）。[23] P. Blaha、K. Schwarz、F. Tran、R. Laskowski、G. K. H. Madsen 和 L. D. Marks，《WIEN2k：用于计算固体性质的 APW+lo 程序》，化学物理杂志**152**，074101（2020）。

[24] J . P. Perdew, K. Burke, and M. Ernzerhof, Generalized gradient approximation made simple，《物理评论快报》77，3865（1996）。[25] V. I. Anisimov、I. V. Solovyev、M. A. Korotin、M. T. Czyżyk 和 G. A. Sawatzky，密度泛函理论与 NiO 光电子能谱，《物理评论B》48，16929（1993）。[26] F. Ye、S. Chi、B. C. Chakoumakos、J. A. Fernandez-Baca、T. Qi 和 G. Cao，Sr_2IrO_4 的磁结构与晶体结构：中子衍射研究，《物理评论B》87，140406（2013）。[27] V. Brouet、J. Mansart、L. Perfetti、C. Piovera、I. Vobornik、P. L. F`evre、F. Bertran、S. C. Riggs、M. C. Shapiro、P. Giraldo-Gallo 和 I. R. Fisher，La 掺杂引起 $Sr_2IrO_4$ 能隙两侧谱权重的转移，《物理评论B》92，081117（2015）。[28] A. Louat、B. Lenz、S. Biermann、C. Martins、F. Bertran、P. L. F`evre、J. E. Rault、F. Bert 和 V. Brouet，掺杂及未掺杂 Sr_2IrO_4，中轨道特征、对称性破缺和赝能隙的角分辨光电子能谱研究，《物理评论B》100，205135（2019）。[29] J. G. Connell、B. J. Isaac、G. B. Ekanayake、D. R. Strachan 和 S. S. A. Seo，采用去离子水浸取和热退火工艺制备原子级平坦的 $SrTiO_3$ 表面，《应用物理快报》101，251607（2012）。[30] S. G. Bhat、N. Gauquelin、N. K. Sebastian、A. Sil、A. Bćeće、J. Verbeeck、D. Samal 和 P. S. A. Kumar，正交晶系与六方晶系外延 $SrIrO_3$ 薄膜：结构稳定性及相关电输运性质，《欧洲物理快报》122，28003（2018）。[31] A. Gutićerrez-Llorente、L. Iglesias、B. Rodrıguez-Gonzćalez 和 F. Rivadulla，脉冲激光沉积 $Sr_{n+1}Ir_nO_{3n+1}$ 薄膜的外延稳定化：生长动力学与应变的交织效应，《应用物理快报：材料》6，091101（2018）。[32] L. Zhang、Q. Liang、Y. Xiong、B. Zhang、L. Gao、H. Li、Y. B. Chen、J. Zhou、S.-T. Zhang、Z.-B. Gu、S.-h. Yao、Z. Wang、Y. Lin 和 Y.-F. Chen，输运行为揭示压缩应变 $SrIrO_3$ 薄膜中可调控的半金属态，《物理评论B》91，035110（2015）。[33] F. Ye、X. Wang、C. Hoffmann、J. Wang、S. Chi、M. Matsuda、B. C. Chakoumakos、J. A. Fernandez-Baca 和 G. Cao，$Sr_2Ir_{1-x}Rh_xO_4$，中的结构对称性判定与磁性演变，《物理评论B》92，201112（2015）。[34]A. Kokalj，计算机图形学和图形用户界面作为原子尺度物质模拟工具，《计算材料科学》28，155（2003）；代码可从 http://www.xcrysden.org/ 获取。

[35] H. Burzlaff 和 H. Zimmermann，《国际晶体学表》（Springer，2006），第 4 版，第 742–749 页，第 章“基底、点阵、布拉菲点阵及其他分类”。[36] B. J. Kim、J. Yu、H. Koh、I. Nagai、S. I. Ikeda、S.-J. Oh 和 C. Kim，过渡金属氧化物 Sr_2RhO_4 中缺失的 xy-带费米面：八面体旋转对电子结构的影响，《物理评论快报》97，106401（2006）。[37] S. J. Moon、H. Jin、K. W. Kim、W. S. Choi、Y. S. Lee、J. Yu、G. Cao、A. Sumi、H. Funakubo、C. Bernhard 和 T. W. Noh，过渡金属氧化物 $Sr_{n+1}Ir_nO_{3n+1}$ （$n = 1$、2 和 ∞）中的维度调控绝缘体-金属转变及关联金属态，《物理评论快报》101，226402（2008）。[38] I. Battisti、K. M. Bastiaans、V. Fedoseev、A. de la Torre、N. Iliopoulos、A. Tamai、E. C. Hunter、R. S. Perry、J. Zaanen、F. Baumberger 和 M. P. Allan，轻度掺杂莫特绝缘体中赝能隙与涌现序的普适性，《自然·物理》13，21（2016）。[39] S. W. Lovesey、D. D. Khalyavin、P. Manuel、L. C. Chapon、G. Cao 和 T. F. Qi，四种铱氧化物中中子及共振X射线布拉格衍射图样的磁对称性，《物理学杂志：凝聚态物质》24，496003（2012）。[40] C. Dhital、T. Hogan、Z. Yamani、C. de la Cruz、X. Chen、S. Khadka、Z. Ren 和 S. D. Wilson，Sr_2IrO_4，中关联相行为的中子散射研究，《物理评论B》87，144405（2013）。[41] B. J. Kim、H. Jin、S. J. Moon、J.-Y. Kim、B.-G. Park、C. S. Leem、J. Yu、T. W. Noh、C. Kim、S.-J. Oh、J.-H. Park、V. Durairaj、G. Cao 和 E. Rotenberg，相对论自旋轨道耦合在 Sr_2IrO_4，中诱导的新型 $J_{\mathrm{eff}} = 1/2$ 莫特态，《物理评论快报》101，076402（2008）。[42] C. Martins、B. Lenz、L. Perfetti、V. Brouet、F. Bertran 和 S. Biermann，纯态及电子掺杂 Sr_2IrO_4 中的非局域库仑关联：定向团簇动力学平均场理论给出的谱函数、费米面和类赝能隙谱权重分布，《物理评论：材料》2，032001（2018）。[43] A. Damascelli、Z. Hussain 和 Z.-X. Shen，铜氧化物超导体的角分辨光电子能谱研究，《现代物理评论》75，473（2003）。[44] G.-Q. Liu、V. N. Antonov、O. Jepsen 和 O. K. Andersen，库仑增强的自旋轨道劈裂：Sr_2RhO_4 难题中缺失的一环，《物理评论快报》101，026408（2008）。[45] S. Zhou、K. Jiang、H. Chen 和 Z. Wang，母体及电子掺杂铱酸盐 Sr_2IrO_4，中的关联效应与隐藏的自旋轨道纠缠电子序，《物理评论X》7，041018（2017）。

[46] J.-M. Carter、V. V. Shankar、M. A. Zeb 和 H.-Y. Kee，《钙钛矿铱酸盐中的半金属与拓扑绝缘体》，《物理评论B》**85**，115105（2012）。[47] J. Liu、D. Kriegner、L. Horak、D.Puggioni、C. R. Serrao、R. Chen、D. Yi、C. Frontera、V. Holy、A. Vishwanath、J. M. Rondinelli、X. Marti 和 R. Ramesh，《应变诱导的非对称空间群对称性破缺及正交钙钛矿铱酸盐中狄拉克半金属节点线的消失》，《物理评论B》**93**，085118（2016）。[48] Y. F. Nie、P. D. C. King、C. H. Kim、M. Uchida、H. I. Wei、B. D. Faeth、J. P. Ruf、J. P. C. Ruff、L. Xie、X. Pan、C. J. Fennie、D. G. Schlom 和 K. M. Shen，《半金属态 SrIrO 中自旋轨道相互作用、维度和八面体旋转的相互作用》$_3$，《物理评论快报》**114**，016401（2015）。[49] Z. T. Liu、M. Y. Li、Q. F. Li、J. S. Liu、W. Li、H. F. Yang、Q. Yao、C. C. Fan、X. G. Wan、Z. Wang 和 D. W. Shen，《直接观测半金属态钙钛矿 SrIrO 薄膜中的狄拉克节点抬升》$_3$，Sci. Rep. **6**，30309（2016）。[50] P. Sch¨utz、D. D. Sante、L. Dudy、J. Gabel、M. St¨ubinger、M. Kamp、Y. Huang、M. Capone、M.-A. Husanu、V. N. Strocov、G. Sangiovanni、M. Sing 和 R. Claessen，《自旋轨道耦合 SrIrO 中由维度驱动的金属 — 绝缘体转变》$_3$，《物理评论快报》**119**，256404（2017）。[51] D. Puggioni 和 J. M. Rondinelli，《关于“正交晶系 SrIrO 钙钛矿的高压合成及其正磁阻”的评论》$_3$ [J. Appl. Phys. 103，103706（2008）],J. Appl. Phys. **119**，086102（2016）。[52] J. G. Zhao、L. X. Yang、Y. Yu、F. Y. Li、R. C. Yu、Z. Fang、L. C. Chen 和 C. Q. Jin，《正交晶系 SrIrO 钙钛矿的高压合成及其正磁阻》，J. Appl. Phys. **103**，103706（2008）。[53] B. Sohn 和 C. Kim，《厚度可控的钙钛矿 SrRuO 薄膜中电子能带重构的演变》，J. Korean Phys. Soc. 10.1007/s40042-022-00633-5（2022）。

补充信息

我们附上了一个 ZIP 压缩包，其中包含 WIEN2k 结构、相关脚本、初始化及能带展开工作流程。有关压缩包内容的更多说明，请参阅其中的 README 文件。

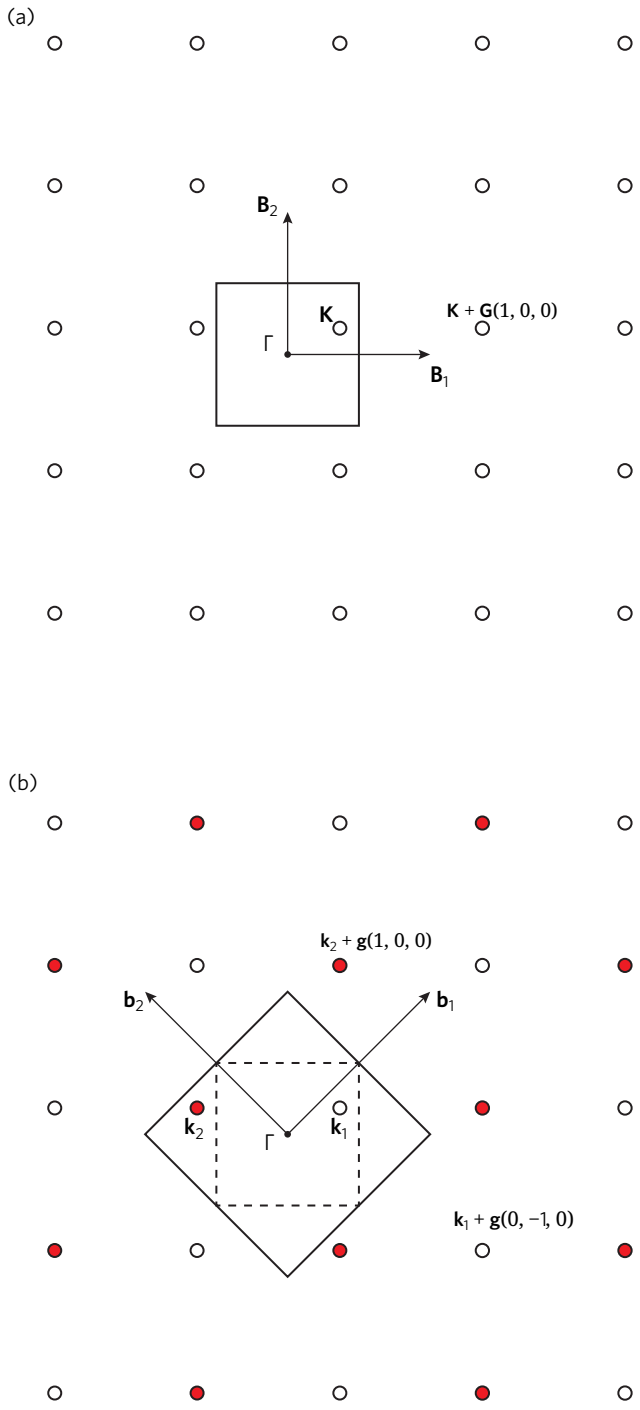

图1. 倒易空间中的能带展开。(a) 具有任意$\mathbf{K}$ 点的超胞布里渊区。(b) 通过 $P = [1, 1; \bar{1}, 1]$的二维变换矩阵得到的原胞布里渊区。晶胞体积变化了两倍（$n_{\mathrm{v}} = 2$），因此$\mathbf{K}$ 点变换为两个新的点$\mathbf{k}_1$和$\mathbf{k}_2$，它们形成两组平面波系数（空心标记和红色标记）。虚线表示原胞布里渊区内的超胞布里渊区。

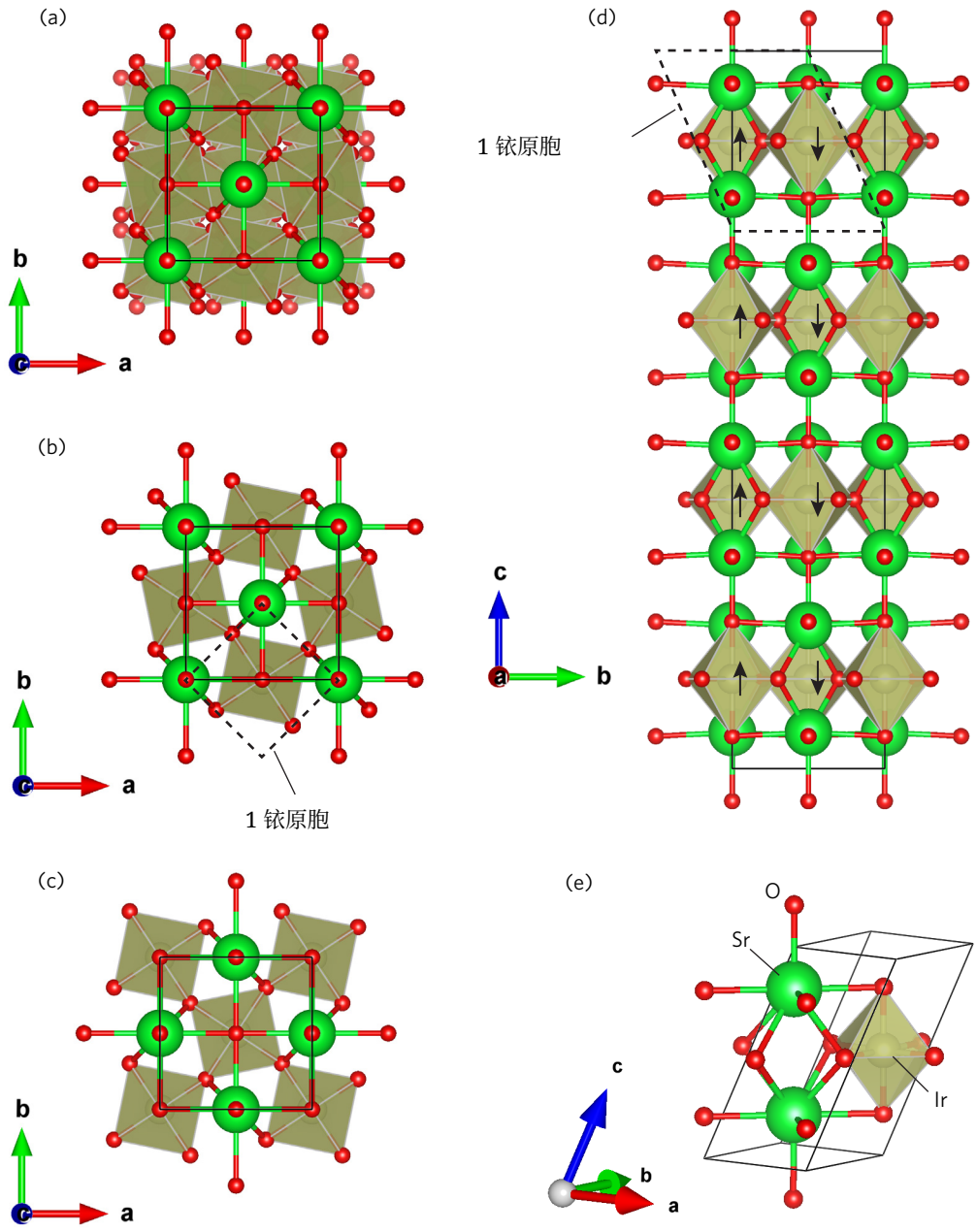

图 2. Sr_2IrO_4 的结构（空间群 88，$I4_1/a$（非磁性）或 13，P2/c（磁性））：(a) 俯视图，(b) 仅显示第一铱层的俯视图，(c) 仅显示第二铱层的俯视图，(d) 侧视图，箭头表示磁序；(e) 使用 $P^{-1} = (1/2,\ 1/2,\ 1/2;\ 1/2,\ 1/2,\ 0;\ 0,\ 0,\ 1/4)$ 的变换矩阵，将无八面体倾斜的超胞变换得到的原始1铱原胞（空间群 139，I4/mmm）。(a)–(d) 图中存在八面体倾斜。

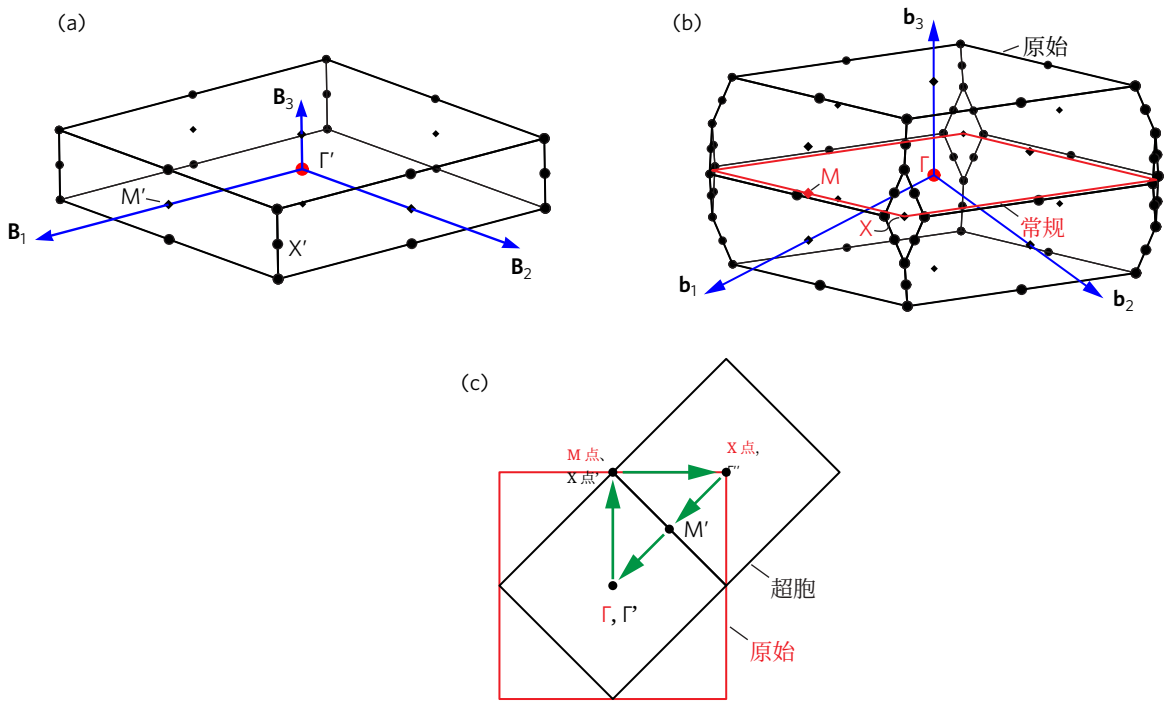

图 3. (a) Sr_2IrO_4 四方晶胞的布里渊区（空间群 88）。(b) 体心四方晶格的原胞布里渊区（黑色）和常规布里渊区的(k_x、 k_y、0)平面（红色）。(c) 原胞布里渊区与超胞布里渊区的叠加图（俯视图）。(k_x、 k_y、0)平面内关注的 k 路径以绿色箭头标出。

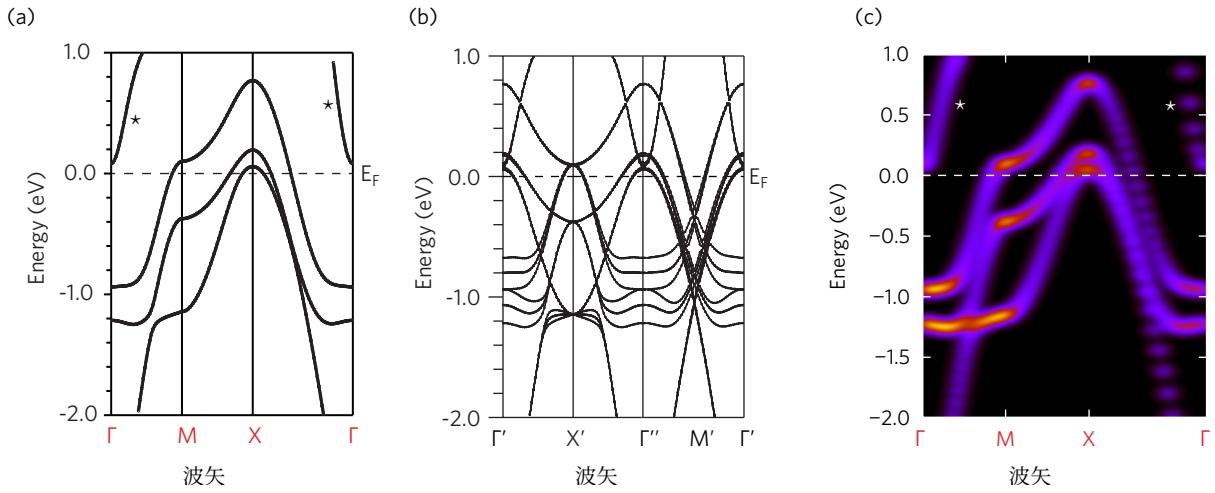

图 4. 未考虑八面体倾斜时，Sr_2IrO_4 在 PBE+自旋轨道耦合理论水平下的能带结构：(a) 体心四方原胞（空间群 139，含 1 个铱原子），(b) 四方超胞（空间群 88，含 8 个铱原子），(c) 使用 $P = [1, \bar{1}, \bar{2}$ 将超胞能带展开到原胞；1， 1， $\bar{2}$；$0, 0, 4]$。星号 (*) 标记 $d_{x^2-y^2}$ 态。能量以费米能为参照绘制。倒易空间中高对称点的红色（黑色）标签对应原胞（超胞）布里渊区。

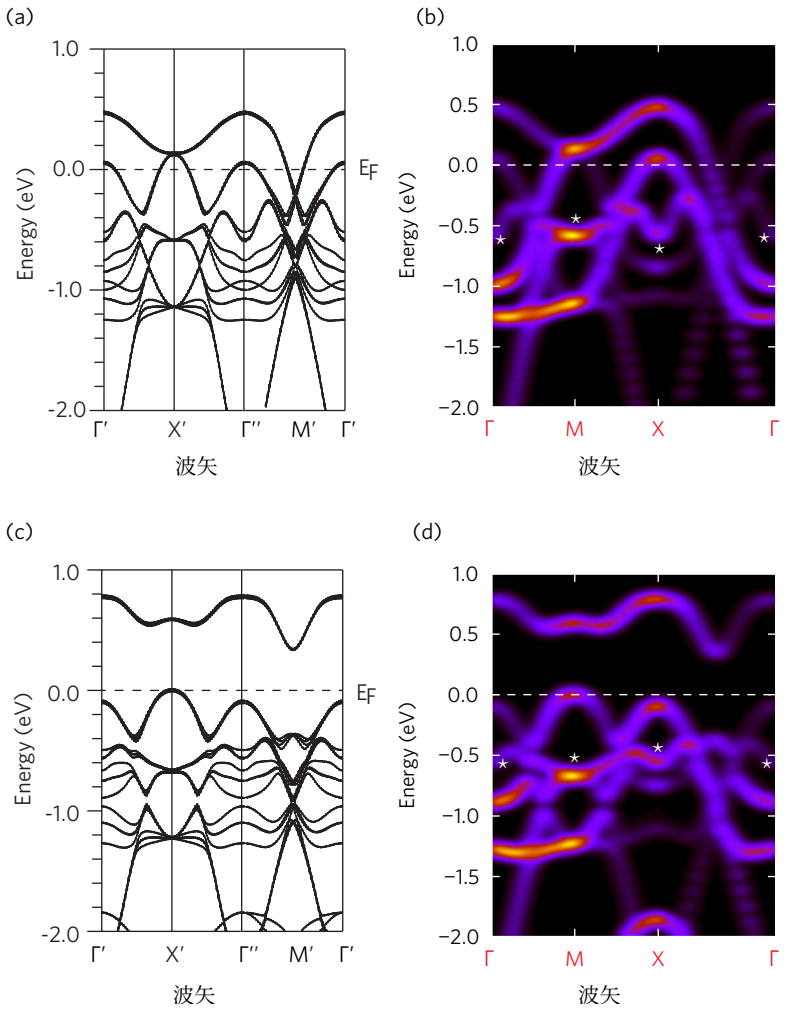

图5. 含八面体倾斜的 Sr_2IrO_4 展开能带结构：(a,b) PBE+SOC 折叠能带与展开能带；(c,d) PBE+SOC，铱 d 轨道的位点能为 $U_{\text{eff}} = 3$ eV。能量相对于费米能绘制。星号 (*) 标记 d_{xy} 态。

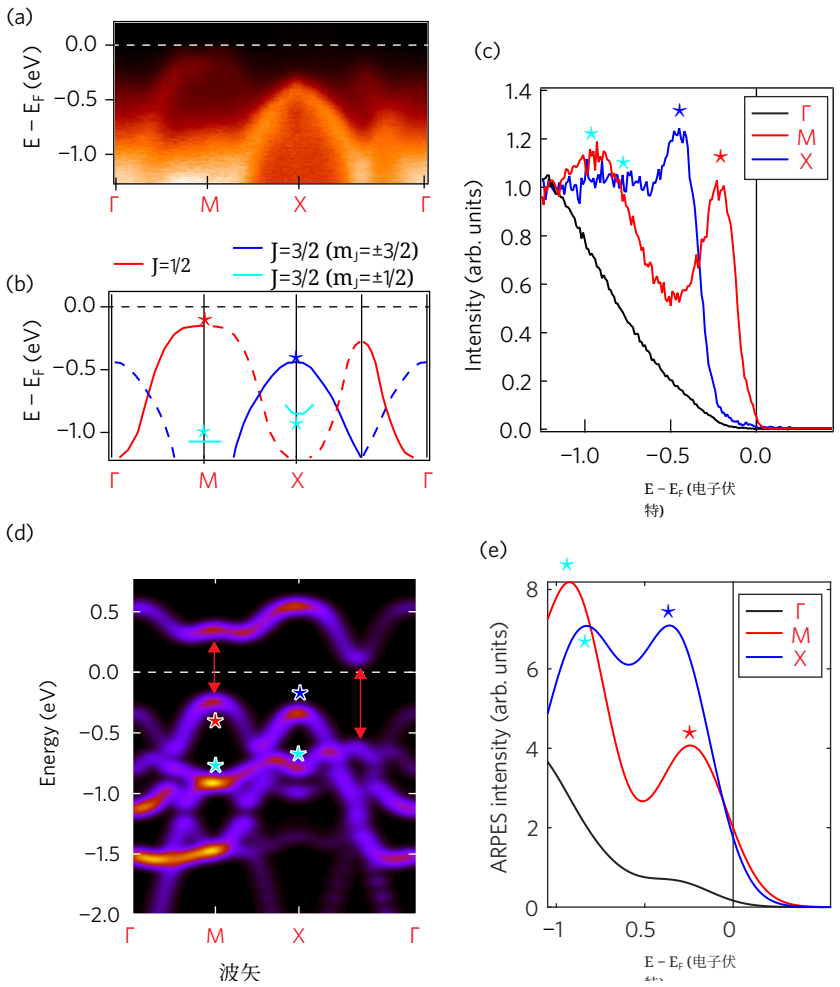

图 6. (a) 沿路径 Γ-M 点-X 点-Γ 的角分辨光电子能谱强度能量-动量图。(b) 角分辨光电子能谱中可见主能带色散关系示意图。线条是根据数据绘制的视觉引导线，颜色则通过与计算结果比较确定。(c) X 点（蓝色）、 Γ （黑色）和 M 点（红色）处的能量分布曲线。(d) 沿相同路径与展开计算的比较。红色箭头标示磁隙的开启。(e) X 点、 Γ 和 M 点处计算得到的角分辨光电子能谱（详情见正文）。计算中费米能的位置经过调整，以匹配实验中费米能与面板 (c) 中 M 点处 $J = 1/2$ 能带最高点（红星）之间的能量差。

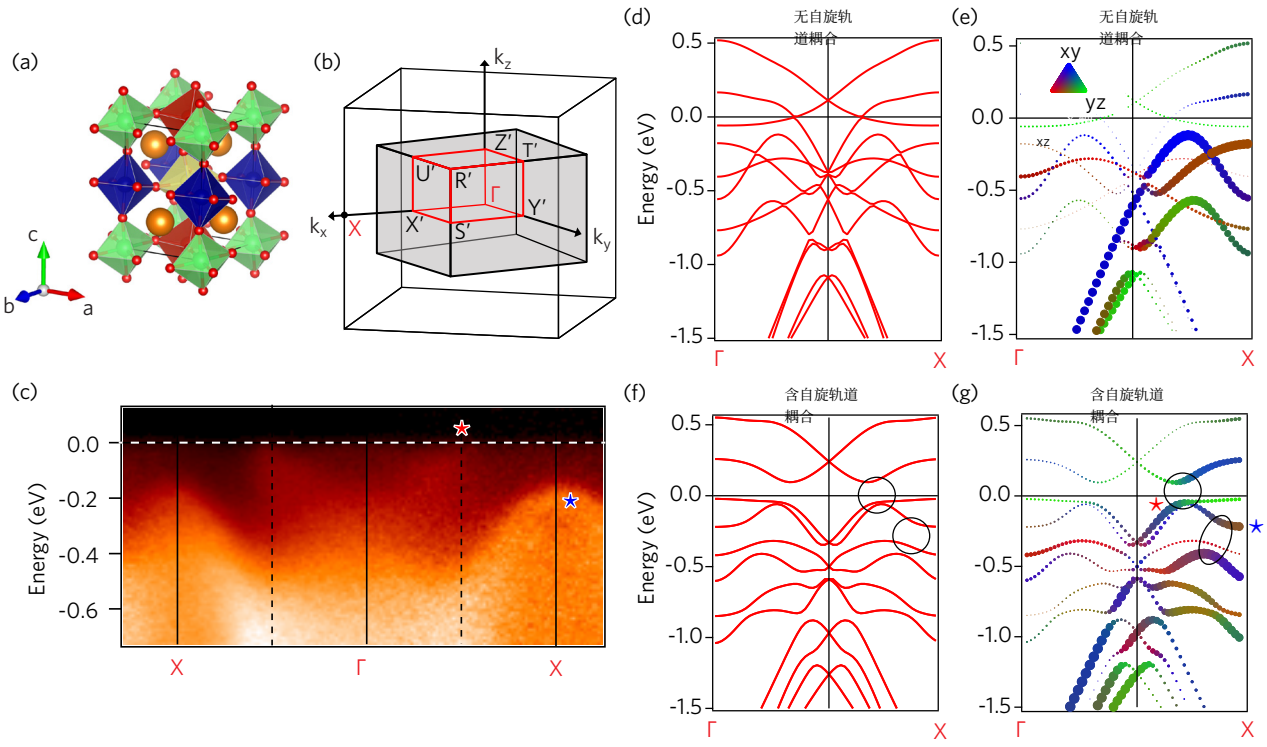

图 7. (a) $SrIrO_3$ 结构示意图。图中展示了 4 个不等价的 Ir，分别位于不同颜色的氧八面体中心。(b) 对应布里渊区示意图。黑色立方体对应原胞布里渊区（拟立方晶胞），阴影区域对应超胞布里渊区。(c) 光子能量为 100 eV 时测得的 $SrIrO_3/SrTiO_3$，薄膜沿 ΓX 方向的能量-动量色散图。 ΓX 路径是原胞的对角线，与图 3(c) 类似。(d) $k_z = 0$ 无自旋轨道耦合时沿 ΓX 方向计算得到的能带结构。(e) 与 (d) 相同，展开权重由标记的大小表示，颜色标示 d_{xz} （红色）、 d_{yz} （绿色）和 d_{xy} （蓝色）成分。(f,g) 与 (d,e) 相同，但包含自旋轨道耦合。圆圈标出自旋轨道耦合诱导出较大带隙的区域。星号标出文中讨论的能带。

表 I. 结构与计算参数 .

参数	Sr_2IrO_4	$SrIrO_3$
空间群（非磁性）	88 ($I4_1/a$)	62 (Pbnm)
空间群（磁性）	13 (P2/c)	n/a
晶格参数（ Å)	5.485, 25.775	5.568, 5.597, 7.892
R_{MT} (玻尔半径)	2.24（锶）	2.26（锶）
	1.98（铱）	2.09（铱）
	1.62（氧）	1.71（氧）
n_{val}	10（锶）	10（锶）
	31（铱）	31（铱）
	2（氧）	2（氧）
$R_{\mathrm{MT}_{\mathrm{min}}} K_{\mathrm{max}}$	7.0	7.0
G_{max}	12	12
l_{max}	10	10
$l_{\mathrm{vns}_{\mathrm{max}}}$	6	4
k 网格	$12 \times 12 \times 2$	$11 \times 11 \times 7$
	（已偏移）	
能量（Ry）和	10^{-4}	10^{-4}
电荷收敛。	10^{-3}	10^{-3}

表 II. 体心四方倒易晶格点。

标签	常规 [21]	原始（标准 [21]）	原始（图 3c）
Γ	(0, 0, 0)	(0, 0, 0)	(0, 0, 0)
X	(1/2, 1/2, 0)	(0, 0, 1/2)	(1/2, 1/2, 1/2)
M	(1/2, 0, 0)	(−1/4, 1/4, 1/4)	(1/2, 0, 1/4)