arXiv:2611.30968v1 [cond-mat.str-el] 23 Nov 2026

磁场角分辨光电子能谱作为贝里曲率和轨道磁矩的直接探针

Seohyun Kong、Bernd Braunecker 和 Luke C. Rhodes*SUPA，圣安德鲁斯大学物理与天文学学院，North Haugh，圣安德鲁斯，KY16 9SS，英国

贝里曲率和轨道磁矩是理解反常霍尔效应等电子输运现象的核心，但要在保留动量分辨率的情况下直接测量这些物理量，在实验上仍然颇具挑战。在这里，我们展示了弱磁场中的角分辨光电子能谱测量（磁场角分辨光电子能谱）为测量这两个物理量提供了直接途径。我们建立了弱磁场中光电子发射的解析理论，并表明，对于任意材料，即使存在自能效应，光电子发射强度的一阶变化也与贝里曲率和轨道磁矩均成正比。对于线偏振光，矩阵元在磁场的一阶近似下保持不变，因此强度变化直接反映了这些物理量。以单层 WSe_2 为例，我们展示了如何在典型实验中提取这两个物理量。因此，这一发现表明，磁场角分辨光电子能谱可作为测量量子材料中动量分辨贝里曲率和轨道磁矩的一般途径。

贝里曲率和轨道磁矩（OMM）是凝聚态理论的两大基石。已知它们直接支配反常霍尔效应 [1]，轨道霍尔效应 [2] 以及低场磁阻 [3]。贝里曲率是拓扑材料发展的核心支柱，这是由于在非相互作用二维材料中对其在布里渊区内积分时具有量子化特性 [4, 5]。人们已投入大量精力对真实材料中的拓扑相进行编目，高通量方案则通过第一性原理计算确定了数千种候选材料 [6]。然而，尽管取得了这些进展，对动量分辨的贝里曲率和轨道磁矩进行系统的直接测量，在实验上仍具有挑战性。

角分辨光电子能谱（ARPES）能够直接解析量子材料动量空间中的电子结构，并且一直是识别拓扑绝缘体中拓扑保护表面态的核心手段 [7, 8]。此前已有研究表明，使用圆偏振光可以使某些能带的矩阵元产生不对称性，从而提取适当能带的赝自旋和$\mathbf{d}$矢量信息，而这些信息可与贝里曲率、轨道磁矩以及量子几何张量联系起来 [9–13]。然而，这种方法面临着将矩阵元不对称性与光子束及样品几何的对准效应区分开的实验挑战，并且仅限于部分狄拉克型能带色散。

在此，我们提出一种利用角分辨光电子能谱的替代实验方法，通过施加弱磁场，直接提取任意材料的贝里曲率和轨道磁矩。传统上，人们会避免在角分辨光电子能谱装置中使用磁场，因为洛伦兹力会使光电子轨迹发生偏转，并降低动量分辨率。然而，近期的研究[14–17]克服了这一限制，表明只要对由此产生的光电子偏转进行系统校正，便仍可在 $10 - 100$ mT 的磁场下测量谱函数；这种技术被称为磁场角分辨光电子能谱。

本文表明，弱磁场下光电子发射强度的一阶修正与贝里曲率和轨道磁矩均直接成正比，并展示了如何通过测量光电子发射信号的差异来提取这些量，即使存在自能效应也不例外。我们证明，线偏振光不会影响一阶矩阵元。因此，本研究确立了磁场角分辨光电子能谱这一途径，可直接测量动量分辨的贝里曲率和轨道磁矩，为直接实验研究电子波函数的几何性质开辟了道路。

角分辨光电子能谱测量光电子强度 $I(\mathbf{k}\ \omega)$ 随能量 ω 和动量$\mathbf{k}$的变化。根据三步模型和突然近似，该强度通常写作 [18–20]

$$I(\mathbf{k},\omega) = \frac{2\pi}{\hbar}\sum_{f,i} |M_{f,i}(\mathbf{k})|^2\, A(\mathbf{k},\omega)\, f(\omega). \qquad (1)$$

这里，$|M_{f,\ i}(\mathbf{k})|^2$ 是单粒子矩阵元，表征光子激发电子从初态 i 跃迁至末态 f的概率。 $A(\mathbf{k}\ \omega)$ 是单粒子谱函数，而 $f(\omega)$ 是费米-狄拉克分布。

理解弱磁场下公式（1）如何发生变化需要谨慎，因为磁场会改变平均值——
动量变量的定义。最小耦合将正则波矢$\hat{}\boldsymbol{\kappa}$ 替换为动力学波矢$\hat{}\mathbf{k} = \hat{}\boldsymbol{\kappa} + \frac{e}{\hbar}\mathbf{A}(\hat{}\mathbf{r})$，其中$\mathbf{A}$ 为矢势，$-e$为电子电荷。假设磁场 B_z沿 z 方向施加，则(x, y)分量

此时$\hat{\mathbf{k}}$的分量不再对易，$[\hat{k}_x, \hat{k}_y] = -ieB_z/\hbar$，因此动量分辨量不能像普通函数那样相乘。此外，矢势不具有平移不变性，任意算符 O 的实空间核$\mathbf{r}_2|\hat{O}|\mathbf{r}_1\hat{}$会获得规范依赖相位，其后续傅里叶变换也不再具有规范不变性。然而，仍可通过定义坐标代换$\mathbf{R} = \frac{1}{2}(\mathbf{r_1} + \mathbf{r_2})$和相对坐标$\mathbf{r} = \mathbf{r_2} - \mathbf{r_1}$，并在 d 维空间中对相对坐标 [21–24], 进行傅里叶变换，将算符写成实空间与动量空间混合基形式，

$$O_W(\mathbf{R},\mathbf{k}) = \int \mathrm{d}^d r\, e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} e^{-i\Phi} \langle \mathbf{R} + \tfrac{\mathbf{r}}{2}|\hat{O}|\mathbf{R} - \tfrac{\mathbf{r}}{2}\rangle, \quad (2)$$

其中 O_W 称为该算符的 Weyl 符号，相位 $\Phi(\mathbf{R}、\mathbf{r}) = -\frac{e}{\hbar}\int_{\mathbf{R}+\mathbf{r}/2}^{\mathbf{R}-\mathbf{r}/2} \mathrm{d}\boldsymbol{\ell}\cdot\mathbf{A}(\boldsymbol{\ell})$ 通过 Wilson 线 $e^{-i\Phi}$ 引入，该 Wilson 线会抵消核 [25]的规范依赖相位。对于算符的乘积，由于位置与动量不对易，傅里叶变换会获得额外项。这些项被编码在 Moyal 星乘积 $\hat{}$[22] $(\hat{fg})_W = f_W \star g_W$ [25]中。对于沿 B_z 方向的磁场，该星算符可分解为两个因子 $\star = \star_0\star_B$ [23, 24, 26]，其中

$$\star_0 = \exp\left(\frac{i}{2}\left[\overleftarrow{\nabla}_{\mathbf{R}}\cdot\overrightarrow{\nabla}_{\mathbf{k}} - \overleftarrow{\nabla}_{\mathbf{k}}\cdot\overrightarrow{\nabla}_{\mathbf{R}}\right]\right), \quad (3)$$

$$\star_B = \exp\left(-\frac{ieB_z}{2\hbar}\left[\overleftarrow{\nabla}_{\mathbf{k}}\times\overrightarrow{\nabla}_{\mathbf{k}}\right]_z\right), \quad (4)$$

导数算符上方的箭头（∇_i）定义了导数作用于其左侧还是右侧的 Weyl 符号。可以将式（1）改写为 Weyl 符号和星积的形式，即 [25]

$$I(\mathbf{k}_f,\omega) = \frac{2\pi}{\hbar}\sum_{n,m,\chi}\int \frac{\mathrm{d}^d R\,\mathrm{d}^d k}{(2\pi)^d} f(\omega) \times \mathrm{tr}\left\{M_W \star A_W^{(n,m)} \star M_W^* \star \left(|\chi,\mathbf{k}_f\rangle\langle\chi,\mathbf{k}_f|\right)_W\right\}, \quad (5)$$

其中 tr 表示对自旋自由度取迹。 M_W是光电子发射偶极算符 $\hat{M} = \frac{e\hbar}{m}\mathbf{A}^{\mathrm{ph}}\cdot\hat{\mathbf{k}}$ 的 Weyl 符号，其中$\mathbf{A}^{\mathrm{ph}}$是光子矢势 [18], 在偶极近似下与$\mathbf{R}$无关。A_W 是由格林函数得到的谱算符的 Weyl 符号，而 $\left(|\chi,\mathbf{k}f\rangle\langle\chi,\mathbf{k}_f|\right)_W$是投影到末态的投影算符的 Weyl 符号，其中动量为$\mathbf{k}f$，自旋态为 χ。

我们可以通过将式（5）按 B_z 的幂展开，求得光电子发射强度的一阶修正。这涉及星积的展开以及 Weyl 符号的展开$O_W = O^{(0)} + O^{(1)} + \ldots$其中 $O^{(1)} \propto B_z$。零阶项重现了式（1）中的常规光电子发射表达式，现记为

$$I^{(0)}(\mathbf{k},\omega) = \frac{2\pi}{\hbar}|M^{(0)}(\mathbf{k})|^2\, A^{(0)}(\mathbf{k},\omega)\, f(\omega). \quad (6)$$

B_z中的一阶修正包含三个项[25],，其中两个项依赖于$\mathrm{Im}[\mathbf{A}_{\mathrm{ph}}\times\mathbf{A}_{\mathrm{ph}}^*]$，仅当$\mathbf{A}^{\mathrm{ph}}$ 为复数时才非零。这些项对于使用圆偏振光测得的光电子发射强度很重要，但不会影响使用线偏振光测得的光电子发射强度，此时$\mathbf{A}^{\mathrm{ph}}$可以取为实数。因此，以下仅考虑线偏振光的情况，剩余的一阶修正为

$$I^{(1)}(\mathbf{k},\omega;B_z) = \frac{2\pi}{\hbar}|M^{(0)}(\mathbf{k})|^2\, A^{(1)}(\mathbf{k},\omega;B_z)\, f(\omega). \quad (7)$$

我们强调，此处的矩阵元 $M^{(0)}(\mathbf{k})$ 与零磁场下相同，因此，在磁场和线偏振光作用下，光电子发射强度的修正完全源于磁场引起的谱函数变化。

修正项 $A^{(1)}$ 通过基本关系 $A^{(1)} = -\frac{1}{\pi}\mathrm{Im\ Tr}\ G^{(1)}$ 得到，其中 $G^{(1)}$ 是延迟格林函数的一阶修正。后者通过 Dyson方程计算，其 Weyl空间形式为

$$(\omega - H_W - \Sigma_W)\star G_W = 1, \quad (8)$$

其中，H_W、Σ_W 和 G_W 分别表示哈密顿量、自能和格林函数的 Weyl 符号。展开星积和 Weyl符号 [25]，并从 Weyl 符号变换回原表示后，我们发现 $G^{(1)}$ 可分解为局域部分和巡游部分，

$$G^{(1)}(\mathbf{k},\omega;B_z) = \underbrace{G^{(0)}(H^{(1)} + \Sigma^{(1)})G^{(0)}}_{\text{local}} + \underbrace{\frac{ie\hbar B_z}{2}G^{(0)}(\tilde{v}_y G^{(0)}\tilde{v}_x - \tilde{v}_x G^{(0)}\tilde{v}_y)G^{(0)}}_{\text{itinerant}}, \quad (9)$$

其中 $\partial_{k_\mu}(H^{(0)} + \Sigma^{(0)}) = \hbar\tilde{v}_\mu$ 是重整化能带速度，而 $\partial_{k_\mu}G^{(0)} = \hbar G^{(0)}\tilde{v}_\mu G^{(0)}$。此处 $H^{(1)} = \mu_B B_z(L_z + g_s S_z)$ 是磁场中 Bloch哈密顿量的一阶标准微扰理论结果，其中 L_z 和 S_z 分别为轨道角动量和自旋角动量算符，μ_B 为玻尔磁子，而 g_s 为电子自旋 g因子；三者共同给出常规的塞曼分裂。$\Sigma^{(1)}$ 取决于所考虑的自能，但仍会使 $H^{(1)}$中的裸轨道项和塞曼项发生重整化。方程（9将弱磁场中的格林函数直接与其零场对应物联系起来，并且可以针对任意电子结构和一般的自

能量函数进行数值计算。

然而，为了获得解析上的洞见，我们假设自能在能带空间中为对角形式，因此零场格林函数可写为预解式

$$G^{(0)}(\mathbf{k},\omega)=\sum_n \frac{|n^{(0)}\rangle\langle n^{(0)}|}{\omega-E_n^{(0)}},\quad E_n^{(0)}=\epsilon_n^{(0)}+\Sigma_n^{(0)},\tag{10}$$

其中 $\epsilon_n^{(0)}$ 是 n零场非相互作用哈密顿量的第 个本征值，投影算符为 $|n^{(0)}\rangle\langle n^{(0)}|$。当构成能带的轨道具有相同的自能时，这一近似是精确的，而对称性通常会强制这一条件成立。更一般地，自能导致的能带混合要求轨道自能存在差异，且这些轨道之间存在杂化；能带间的能量间隔会抑制这种混合，因此只有在轨道特征不同的能带交叉附近，它才会变得重要 [25]。将式（10）代入式（9），并通过 $\mathrm{Tr}\,G^{(1)}=\sum_m\langle m^{(0)}|G^{(1)}|m^{(0)}\rangle$ [25] 求迹，得到

$$\begin{aligned}\mathrm{Tr}\,G^{(1)}(\mathbf{k},\omega;B_z)=&\frac{eB_z}{\hbar}\sum_n\frac{\Omega_n^z}{\omega-E_n^{(0)}}\\&-B_z\sum_n\frac{\tilde{m}_n^z}{(\omega-E_n^{(0)})^2}\end{aligned}\tag{11}$$

其中

$$\Omega_n^z(\mathbf{k})=-2\hbar^2\sum_{m\neq n}\frac{\mathrm{Im}(v_x^{(n,m)}v_y^{(m,n)})}{(\epsilon_n^{(0)}-\epsilon_m^{(0)})^2},\tag{12}$$

是能带 n 沿 z [1, 27]方向的裸贝里曲率对应的TKNN公式。请注意，Ω_n^z 沿 z轴，其构造基于裸本征值和裸速度$v_{x,y}^{(n,m)}=\langle n^{(0)}|\,\hbar^{-1}\partial_{k_{x,y}}H^{(0)}\,|m^{(0)}\rangle$，因此即使存在复自能相互作用，它仍保持实数且不发生重整化。此外，

$$\begin{aligned}\tilde{m}_n^z(\mathbf{k},\omega)=&-\frac{1}{B_z}\langle n|(H^{(1)}+\Sigma^{(1)})|n\rangle\\&-e\hbar\sum_{m\neq n}(E_n^{(0)}-E_m^{(0)})\frac{\mathrm{Im}(v_x^{(n,m)}v_y^{(m,n)})}{(\epsilon_n^{(0)}-\epsilon_m^{(0)})^2},\end{aligned}\tag{13}$$

是经自能修正的复数轨道磁矩 [3, 27–29]，；当 $\Sigma_n^{(0)}\to-i0^+$时，它退化为非相互作用、与能量无关的轨道磁矩；但当 $\Sigma_n^{(0)}$为与能带无关的常数时，也会如此。

取方程（11）的虚部可得一阶谱函数修正

$$\begin{aligned}A^{(1)}(\mathbf{k},\omega;B_z)=&\frac{eB_z}{\hbar}\sum_n\Omega_n^zA_n^{(0)}\\&+B_z\sum_n\mathrm{Re}(Z_n\tilde{m}_n^z)\frac{\partial A_n^{(0)}}{\partial\omega}-\frac{B_z}{\pi}\sum_n\mathrm{Im}(Z_n\tilde{m}_n^z)\frac{\partial\mathrm{Re}\,G_n^{(0)}}{\partial\omega},\end{aligned}\tag{14}$$

其中 $Z_n=(1-\partial_\omega\Sigma_n^{(0)})^{-1}$ 为复数准粒子剩余权重。这里，$A_n^{(0)}=-\frac{1}{\pi}\mathrm{Im}\;G_n^{(0)}$是通常的 ARPES洛伦兹线型，其半宽为 $|\mathrm{Im}\,\Sigma_n^{(0)}|$，中心位于 $\tilde{E}_n^{(0)}=\epsilon_n^{(0)}+\mathrm{Re}\,\Sigma_n^{(0)}$；其余两种线型可由它对 $G_n^{(0)}=(\omega-E_n^{(0)})^{-1}$求导得到。因此，贝里曲率以其独特的线型出现在谱函数中，不受自能影响；而当 Σ非零时，轨道磁矩为复数，并分散在另外两个函数中。

为在实验中提取这些量，考虑反对称化的光电子发射差谱$\Delta I(\mathbf{k}\;\omega;\,B_z)\;=\;I(\mathbf{k}\;\omega;+B_z)\;-\;I(\mathbf{k}\;\omega;\,-B_z)$，根据式(7)，它为

$$\begin{aligned}\Delta I(\mathbf{k},\omega;B_z)=&\frac{4\pi B_z}{\hbar}|M^{(0)}(\mathbf{k})|^2f(\omega)\sum_n\Bigg[\frac{e}{\hbar}\Omega_n^zA_n^{(0)}\\&+\mathrm{Re}(Z_n\tilde{m}_n^z)\frac{\partial A_n^{(0)}}{\partial\omega}-\frac{1}{\pi}\mathrm{Im}(Z_n\tilde{m}_n^z)\frac{\partial\mathrm{Re}\,G_n^{(0)}}{\partial\omega}\Bigg].\end{aligned}\tag{15}$$

这种反对称化方式会消去零场强度以及 B_z 的所有偶次幂，因此，式(15)给出了完整响应，误差阶为 $\mathcal{O}(B_z^3)$。因此，该表达式直接将通常可测量的量与贝里曲率和轨道磁矩联系起来。

$A_n^{(0)}$、$\partial_\omega\mathrm{Re}\,G_n^{(0)}$ 和 $\partial_\omega A_n^{(0)}$这三种线形相对于 $\tilde{E}_n^{(0)}$具有不同的奇偶性。$A_n^{(0)}$和$\partial_\omega\mathrm{Re}\,G_n^{(0)}$关于能量均为偶函数，而 $\partial_\omega A_n^{(0)}$为奇函数。$\partial_\omega\mathrm{Re}\,G_n^{(0)}$还有一个性质：对所有能量积分后结果为零。因此，对式(15)的光电子发射差谱在能量窗口 $\mathcal{W}_n=[\tilde{E}_n^{(0)}-W_{\mathbf{k},n},\tilde{E}_n^{(0)}+W_{\mathbf{k},n}]$ 内积分，得到

$$\frac{\hbar}{2eB_z}\int_{\mathcal{W}_n}\mathrm{d}\omega\;\Delta I(\mathbf{k},\omega;B_z)=\frac{2\pi}{\hbar}|M^{(0)}(\mathbf{k})|^2\;\Omega_n^z(\mathbf{k}),\tag{16}$$

从而可以直接提取贝里曲率。此外，用 $(\omega-\tilde{E}_n^{(0)})$ 对被积函数加权会使线型的奇偶性翻转，因此，

$$\begin{aligned}-\frac{1}{2B_z}\int_{\mathcal{W}_n}\mathrm{d}\omega\;(\omega-\tilde{E}_n^{(0)}(\mathbf{k}))\;\Delta I(\mathbf{k},\omega;B_z)\\=\frac{2\pi}{\hbar}|M^{(0)}(\mathbf{k})|^2\;\mathrm{Re}(Z_n\tilde{m}_n^z(\mathbf{k})),\end{aligned}\tag{17}$$

我们得以测量重整化轨道磁矩。这项分析要求假设在积分范围内 $f(\omega), Z_n$ 和 $\tilde{m}_n^z$ 均为常数，且窗口足够大，能够消除 $\partial_\omega \mathrm{Re}\, G_n^{(0)}$ 的贡献；该贡献会增加一个 $\sim 1/W_{\mathbf{k},n}$ 残余项。另一种方法是直接拟合线型的函数形式。

作为一个具体示例，考虑一层 WSe_2。据理论预测，这种半导体材料在**K** 和 **K′** 点处的自旋分裂能带具有较强的贝里曲率，且在不同的谷中符号相反 [11, 12]。采用跃迁参数取自参考文献 [30]，的密度泛函理论计算结果的二维紧束缚模型，假设使用线偏振光，并取一个常数虚自能$\Sigma_n = \Sigma_n^{(0)} = -i\eta$，我们发现，场反对称化光电子差分谱中的最强信号确实出现在自旋分裂点 **K**、**K′**处，以及 −1电子伏特以下、位于 Γ 点[（图 1（a））]。

在实际操作中，要提取给定 k 处的贝里曲率和轨道磁矩，我们会在正、负磁场下分别测量能量分布曲线（EDC）[图 1（b）]，并将两条 EDC 相减，以获得场反对称化光电子强度 [图 1（c）]。通过比较相对线型，我们已经可以直观地辨认符号变化，例如 K 点与 K′ 点之间的符号相反。随后，为了直接提取贝里曲率和重整化轨道磁矩，我们使用方程（16）或方程（17），对单条能带所跨越能量范围内的这一线型进行积分。对所有 k 重复这一过程后，我们通过数值计算得到完整的贝里曲率 [图 1（d）] 和轨道磁矩[图 1（e）]，并展示了由 E_{top}（k）在图 1（a）中标出的顶部自旋分裂能带的结果。我们已验证，这些表达式能精确复现通过方程（12）和方程（13）计算得到的传统表达式。

我们注意到，对于这一现实的示例，预计可探测信号会较弱，这反映了磁扰动本身的微弱性。对于 WSe_2 在 50毫特斯拉 的磁场下（图 1），ΔI 约为 10^4 零场光电子强度的倍。通过施加更大的磁场，或在具有更大贝里曲率和轨道磁矩的材料中，可以提高这一比值。然而，在实际操作中，测量这一信号需要进行仔细的归一化处理，而且其强度可能低于当前噪声底。

租用 ARPES 仪器。我们还估计，在笼目材料 CsV_3Sb_5 [16]中观察到的谱函数变化，比我们在此预测的要大几个数量级。

我们推导了磁场作用下迟滞格林函数的一阶修正，其意义远不止于光电子发射强度：式（9）中巡游部分相同的反对称化速度-格林函数乘积结构，也构成了

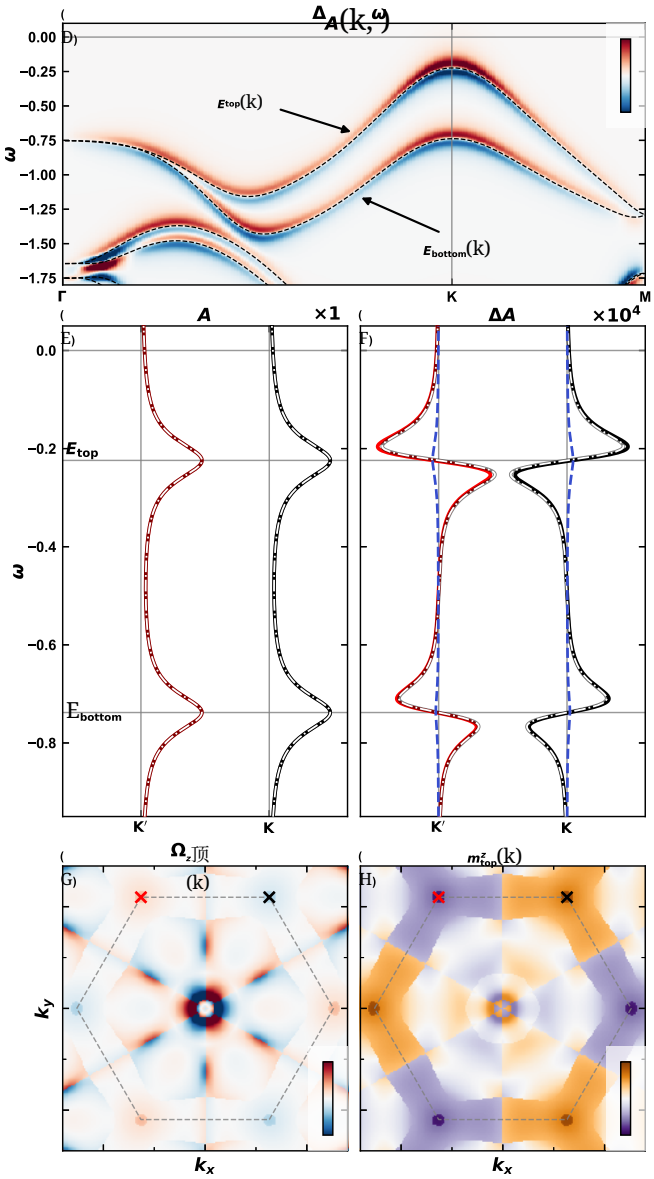


图 1. 利用磁场角分辨光电子能谱提取贝里曲率和轨道磁矩：(a) 对于具有自旋轨道耦合的 WSe_2，紧束缚模型，沿Γ − K − M 路径的场反对称化谱函数修正，$\Delta A = A(\mathbf{k}\ \omega;\ B_z) - A(\mathbf{k}\ \omega;\ -B_z) \propto \Delta I$，直接取自参考文献 [30]。(b) 在 k = K（黑色）和 k =K′（红色）处计算得到的能量分布曲线（EDC），A (k ω)，对应完整谱函数；实线和虚线分别表示正、负磁场下的谱函数。(c) 在 k =K、K′处的场反对称化能量分布曲线，ΔA (k ω)，显示出 K 和 K′处相反的行为。信号放大了 10^4倍。实线（K 处为黑色，K′处为红色）表示 ΔA。白色点划线表示关于 ΔA线型中心对称的分量，蓝色虚线表示其反对称分量。利用公式 (16) 和 (17)，对 (c) 中的顶层能带在所有 k 上积分，得到 (d) 贝里曲率 Ω^z_{top}(k) 和 (e) 轨道磁矩 m^z_{top}(k)（当 Σ为常数时与 $\tilde{m}^z_{\mathrm{top}}$ 一致）。黑色和红色十字分别标出 K 点和 K′ 点。数据中取 $B_z = 50$ mT 和 $\eta = 50$ meV。色条表示相对于最大值的数值，与 (c) 面板所设的标度类似；ω 的单位为电子伏特。

霍尔电导率的久保公式 [1, 27, 31, 32]的基础。这并非巧合：二者都建立在布洛赫本征态相同的动量空间曲率之上。在我们的推导中，$\tilde{v}_x$ 与 $\tilde{v}_y$之间的反对称性源于 Moyal 星乘积对动量非对易性的刻画，而在久保公式中，相同的反对称性则源于霍尔响应是交换电流方向时电导率张量的奇分量。因此，我们的修正可视为对决定本征反常霍尔电导率的同一几何量进行动量分辨探测，这与谱函数是态密度的动量分辨对应量如出一辙。为进一步强调这一点，我们指出，对于绝缘体系统，将我们给出的弱磁场作用下谱函数表达式代入著名的斯特雷达公式 [29, 33]，即可重现量子化霍尔电导率

$$\sigma_{xy} = e\frac{\partial N}{\partial B_z} = e\int_{-\infty}^{E_F} \mathrm{d}\omega \int_{\mathrm{BZ}} \frac{\mathrm{d}^2k}{(2\pi)^2}\, \partial_{B_z} A^{(1)}(\mathbf{k},\omega;B_z) = \frac{e^2}{h}\sum_{n\in\mathrm{occ}} C_n, \tag{18}$$

其中，N 表示粒子数，$C_n = \frac{1}{2\pi}\int_{\text{布里渊区}} \mathrm{d}^2k\, \Omega_n^z(\mathbf{k})$ 表示能带 n的陈数。

总之，我们推导了弱磁场下的 ARPES光电子发射强度表达式，并发现它与动量分辨贝里曲率和轨道磁矩直接相关。尽管这一信号很微弱，但该结果在磁场的一阶近似下是精确的；我们的发现与实验观测之间的障碍，关乎实验灵敏度，而非物理原理。克服这一限制后，便可利用单粒子探针对任意量子材料中的动量分辨贝里曲率和轨道磁矩进行直接测量。

我们感谢 Henry Legg 和 Phil King 富有见地的讨论。LCR 感谢英国工程与自然科学研究委员会通过英国研究与创新署3345提供资助。

* 通信请联系：lcr23@st-andrews.ac.uk

[1] D. J. Thouless、M. Kohmoto、M. P. Nightingale 和 M. den Nijs，二维周期势中的量子化霍尔电导，Phys. Rev. Lett. **49**，405（1982）。[2] Y.-G. Choi、D. Jo、K.-H. Ko、D. Go、K.-H. Kim、H. G. Park、C. Kim、B.-C. Min、G.-M. Choi 和 H.-W. Lee，轻金属钛中轨道霍尔效应的观测，《自然》**619**，52（2023）。[3] T. Thonhauser，固体中的轨道磁化理论，Int. J. Mod. Phys. B **25**，1429（2011）。

[4] B. Simon，《全纯、量子绝热定理与贝里相》，Phys. Rev. Lett. 51, 2167 (1983). [5] M. V. Berry，《绝热变化伴随的量子相因子》，Proc. R. Soc. Lond. A 392, 45 (1984). [6] M. G. Vergniory, B. J. Wieder, L. Elcoro, S. S. P. Parkin, C. Felser, B. A. Bernevig, and N. Regnault，《所有非磁性化学计量材料中的所有拓扑能带》，Science 376, eabg9094 (2022). [7] Y. L. Chen, J. G. Analytis, J.-H. Chu, Z. K. Liu, S.-K. Mo, X. L. Qi, H. J. Zhang, D. H. Lu, X. Dai, Z. Fang, S. C. Zhang, I. R. Fisher, Z. Hussain, and Z.-X. Shen，《三维拓扑绝缘体的实验实现》，Bi_2Se_3, Science 325, 178 (2009). [8] D. Hsieh, Y. Xia, D. Qian, L. Wray, J. H. Dil, F. Meier, J. Osterwalder, L. Patthey, J. G. Checkelsky, N. P. Ong, A. V. Fedorov, H. Lin, A. Bansil, D. Grauer, Y. S. Hor, R. J. Cava, and M. Z. Hasan，《自旋螺旋狄拉克输运区间中的可调拓扑绝缘体》，Nature 460, 1101 (2009). [9] Y. Wang and N. Gedik，《拓扑绝缘体角分辨光电子能谱中的圆二色性》，Phys. Status Solidi RRL 7, 64 (2013). [10] H. Rostami, K. Volckaert, N. Lanata, S. K. Mahatha, C. E. Sanders, M. Bianchi, D. Lizzit, L. Bignardi, S. Lizzit, J. A. Miwa, A. V. Balatsky, P. Hofmann, and S. Ulstrup，《过渡金属二硫属化物光电子发射中的层间与轨道干涉效应》，Phys. Rev. B 100, 235423 (2019). [11] S. Cho, J.-H. Park, J. Hong, J. Jung, B. S. Kim, G. Han, W. Kyung, Y. Kim, S.-K. Mo, J. D. Denlinger, J. H. Shim, J. H. Han, C. Kim, and S. R. Park，《实验观测到反演对称体材料中的隐藏贝里曲率》 $2h$–wse_2,Phys. Rev. Lett. 121, 186401 (2018). [12] S. Cho, J.-H. Park, S. Huh, J. Hong, W. Kyung, B.-G. Park, J. D. Denlinger, J. H. Shim, C. Kim, and S. R. Park，《利用晶体镜面圆二色性光电子发射研究2H-WSe2中的局域贝里曲率》，Sci. Rep. 11, 1684 (2021). [13] S. Kim, Y. Chung, Y. Qian, S. Park, C. Jozwiak, E. Rotenberg, A. Bostwick, K. S. Kim, and B.-J. Yang，《固体中量子度规张量的直接测量》，Science 388, 1050 (2025). [14] S. H. Ryu, G. Reichenbach, C. M. Jozwiak, A. Bostwick, P. Richter, T. Seyller, and E. Rotenberg，《magnetoARPES：磁场控制的角分辨光电子能谱》，Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena 266, 147357 (2023). [15] J. Huang, Z. Yue, A. Baydin, H. Zhu, H. Nojiri, J. Kono, Y. He, and M. Yi，《采用原位可调磁场的角分辨光电子能谱》，Rev. Sci. Instr. 94, 093902 (2023). [16] J. Huang, Z. Ren, H. Tan, J. Hyun, Y. Zhang, T. A. Hulse, Z. Liu, J. M. DeStefano, Y. Xie, Z. Yue, J. Kono, P. Dai, Y. He, A. Pulkkinen, J. Min´ar, J.-H. Chu, Z. Wang, B. Yan, R. M. Fernandes, and M. Yi，《磁场诱导笼目超导体中动量依赖的对称性破缺》，Nat. Phys. 22, 550 (2026). [17] J. Obando-Guevara, H.-T. Le, E. C. Aracena, S. Singha, K. Lee, Y. Guan, Z. Mao, D. Jin, C. Liu, and H. Pfau，《采用可调磁场的高分辨角分辨光电子能谱》，arXiv:2609.08498 10.48550/arXiv.2609.08498 (2026). [18] A. Damascelli, Z. Hussain, and Z.-X. Shen，《铜氧化物超导体的角分辨光电子

发射研究》，Rev. Mod. Phys. 75, 473 (2003). [19] S. Moser，《角分辨光电子发射中矩阵元的实验指南》，J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom. 214, 29 (2017). [20] P. D. C. King, S. Picozzi, R. G. Egdell, and G. Pancione，《量子材料的角分辨、自旋分辨和深度分辨光电子能谱》，Chem. Rev. 121, 2816 2021( ). [21] J. E. Moyal，《作为统计理论的量子力学》，Math. Proc. Cambr. Phil. Soc. 45, 99–124 (1949). [22] M. Hillery, R. F. O'Connell, M. O. Scully, and E. P. Wigner，《物理学中的分布函数：基础》，Phys. Rep. 106, 121 (1984). [23] S. Onoda, N. Sugimoto, and N. Nagaosa，《恒定电磁场驱动的非平衡态理论：Keldysh形式中的非交换量子力学》，Progr. Theor. Phys. 116, 61 (2006). [24] N. Sugimoto, S. Onoda, and N. Nagaosa，《通过变形量子化对Wigner表示进行规范协变表述：应用于存在电磁场时的Keldysh形式》，Progr. Theor. Phys. 117, 415 2007( ). [25] 计算细节见补充材料。[26] A. Polkovnikov，《量子动力学的相空间表示》，Ann. Phys. 325, 1790 (2010). [27] D. Xiao, M.-C. Chang, and Q. Niu，《贝里相对电子性质的影响》，Rev. Mod. Phys. 82, 1959 (2010). [28] G. Sundaram and Q. Niu，《缓慢受扰晶体中的波包动力学：梯度修正与贝里相效应》，Phys. Rev. B 59, 14915 (1999). [29] D. Xiao, J. Shi, and Q. Niu，《贝里相对固体电子态密度的修正》，Phys. Rev. Lett. 95, 137204 2005( ). [30] S. Fang, R. Kuate Defo, S. N. Shirodkar, S. Lieu, G. A. Tritsaris, and E. Kaxiras，《过渡金属二硫属化物的从头算紧束缚哈密顿量》，Phys. Rev. B 92, 205108 (2015). [31] A. Cr´epieux and P. Bruno，《基于久保公式和狄拉克方程的反常霍尔效应理论》，Phys. Rev. B 64, 014416 (2001). [32] I. A. Ado, M. Titov, R. A. Duine, a nd A. Brataas，《直流电导率的久保公式：推广至具有自旋轨道耦合的系统》，Phys. Rev. Res. 6, L012057 (2024). [33] P. Streda，《二维系统中量子化霍尔电导率理论》，J. Phys. C: Sol. St. Phys. 15, L717 (1982).

《磁场角分辨光电子能谱：直接探测贝里曲率和轨道磁矩》的补充材料

SeohyunKong, BerndBrauneckerand LukeC. Rhodes*SUPA*，圣安德鲁斯大学物理与天文学学院，*North Haugh*，圣安德鲁斯，*KY16 9SS*，英国

本补充材料详细介绍光电子发射强度的磁场修正计算。第S1 节介绍维格纳变换、Weyl 符号和磁性莫亚尔星乘积的基本定义与性质。第S2 节推导光电子发射强度的一阶修正的一般形式，并说明对于线偏振光，该强度仅取决于谱函数的修正。第S3 节计算格林函数的一阶修正。第S4 节将上述结果与谱函数联系起来，并说明贝里曲率和轨道磁矩如何由此产生。

S1. 维格纳变换与磁性 Moyal 星乘积

本节将构造规范不变的维格纳变换，并推导磁性莫亚尔星乘积；本补充材料的其余部分均以此为基础。

磁场效应通过最小耦合进入哈密顿量和响应函数。对于电荷为 $-e$ 的电子，最小耦合将正则动量算符 $\hat{\boldsymbol{\kappa}}$ 替换为动力学动量算符 $\hat{\mathbf{k}} = \hat{\boldsymbol{\kappa}} + \frac{e}{\hbar}\mathbf{A}(\hat{\mathbf{r}})$，其中 $\hat{\mathbf{r}}$ 是位置算符。由此，最小耦合通过矢势 $\mathbf{A}$ 引入了显式的位置依赖；矢势产生磁场，满足 $\nabla_{\mathbf{r}} \times \mathbf{A}(\mathbf{r}) = \mathbf{B}(\mathbf{r})$。因此必须谨慎处理：尽管均匀磁场保持系统的物理均匀性，但任何产生该磁场的矢势本身都不可能在普通空间平移下保持不变，所以在任何固定规范下，平移不变性都不是显然的。这会立即影响实空间格林函数这类双点对象。在具有平移不变性的系统中，算符核 $\langle \mathbf{r}_2|\hat{O}|\mathbf{r}_1\rangle$ 只取决于两点间的位移 $\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_1$，，因此一次傅里叶变换就能将其完整地转换到动量空间。一旦存在 $\mathbf{A}(\hat{\mathbf{r}})$，算符核便分别依赖于 $\mathbf{r}_1$ 和 $\mathbf{r}_2$，因而无法再进行这种化简。不过，仍然可以进行如下坐标替换

$$\mathbf{R} = \frac{1}{2}(\mathbf{r}_1 + \mathbf{r}_2) \qquad \& \qquad \mathbf{r} = \mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_1, \tag{S1}$$

它将两个位置替换为质心坐标 $\mathbf{R}$ 和相对坐标 $\mathbf{r}$，其中 $\mathbf{r}_1 = \mathbf{R} - \frac{1}{2}\mathbf{r}$ 和 $\mathbf{r}_2 = \mathbf{R} + \frac{1}{2}\mathbf{r}$。仅对相对坐标进行傅里叶变换，便得到算符的实空间与动量空间混合表示，但这种变换继承了其所作用核的规范依赖性。在一般规范变换 $\mathbf{A}(\hat{\mathbf{r}}) \to \mathbf{A}(\hat{\mathbf{r}}) + \nabla_{\mathbf{r}}\chi(\hat{\mathbf{r}})$ 下，哈密顿量以及由其构造的每个算符都按 $\hat{O} \to \hat{U}\hat{O}\hat{U}^{\dagger}$ 进行变换，其中 $\hat{U} = e^{-i\frac{e}{\hbar}\chi(\hat{\mathbf{r}})}$，因此核获得一个相位 $\langle \mathbf{r}_2|\hat{O}|\mathbf{r}_1 \to e^{-i\frac{e}{\hbar}(\chi(\mathbf{r}_2)-\chi(\mathbf{r}_1))}\langle \mathbf{r}_2|\hat{O}|\mathbf{r}_1$，该相位完全由 χ 在两个端点处的取值决定。

因此，任何具有相同端点差变换的量都可用于补偿规范依赖性，而两点之间矢势的线积分恰好就是这样的量，因为梯度的积分等于其势在两端的差。定义

$$\Phi(\mathbf{R}, \mathbf{r}) = -\frac{e}{\hbar}\int_{\mathbf{R}-\frac{1}{2}\mathbf{r}}^{\mathbf{R}+\frac{1}{2}\mathbf{r}} \mathrm{d}\boldsymbol{\ell} \cdot \mathbf{A}(\boldsymbol{\ell}), \tag{S2}$$

沿连接两端点的直线取值时，同样的变换会使 $\Phi \to \Phi - \frac{e}{\hbar}(\chi(\mathbf{r}_2) - \chi(\mathbf{r}_1))$ 发生平移。将这一项作为额外的指数因子纳入傅里叶变换，我们便可将规范不变的维格纳变换定义为

$$O_W(\mathbf{R}, \mathbf{k}) = \int \mathrm{d}^d r \; e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} e^{-i\Phi(\mathbf{R},\mathbf{r})} \left\langle \mathbf{R} + \frac{1}{2}\mathbf{r}|\hat{O}|\mathbf{R} - \frac{1}{2}\mathbf{r}\right\rangle, \tag{S3}$$

其中 O_W 称为维　　算符 $\hat{O}$ 的 yl 符号。补偿因子 $e^{-i\Phi(\mathbf{R},\mathbf{r})}$ 是一条 Wilson 线。

由此得到的规范不变相空间变量自然地对应于动力学波矢 $\mathbf{k}$，而不是正则波矢 $\boldsymbol{\kappa}$。

在这种混合表象中，两个算符的乘积不再等于其 Weyl 符号的逐点乘积，因为相空间变量并不对易。因此，两个算符乘积的 Weyl 符号变为磁性莫亚尔星乘积 [21–24]

$$\begin{aligned}(fg)_W(\mathbf{R},\mathbf{k}) &= f_W(\mathbf{R},\mathbf{k}) \star g_W(\mathbf{R},\mathbf{k}) \\ &= f_W(\mathbf{R},\mathbf{k}) \exp\left(\frac{i}{2}\left[\overleftarrow{\nabla}_{\mathbf{R}}\cdot\overrightarrow{\nabla}_{\mathbf{k}} - \overleftarrow{\nabla}_{\mathbf{k}}\cdot\overrightarrow{\nabla}_{\mathbf{R}}\right] - \frac{ieB_z}{2\hbar}\left[\overleftarrow{\nabla}_{\mathbf{k}}\times\overrightarrow{\nabla}_{\mathbf{k}}\right]_z\right) g_W(\mathbf{R},\mathbf{k}),\end{aligned} \tag{S4}$$

其中，箭头方向表示导数作用于哪个 Weyl 符号。指数中的第一项是通常的 Moyal 项，源于$\mathbf{R}$与$\mathbf{k}$的不对易性。第二项则是磁场特有的，体现了 $[\hat{k}_i,\hat{k}_j] = -i\frac{e}{\hbar}\varepsilon_{ijk}B_k$，即动力学动量各分量彼此不对易。我们定义

$$\star_0 = \exp\left(\frac{i}{2}\left[\overleftarrow{\nabla}_{\mathbf{R}}\cdot\overrightarrow{\nabla}_{\mathbf{k}} - \overleftarrow{\nabla}_{\mathbf{k}}\cdot\overrightarrow{\nabla}_{\mathbf{R}}\right]\right), \tag{S5}$$

$$\star_B = \exp\left(-\frac{ieB_z}{2\hbar}\left[\overleftarrow{\nabla}_{\mathbf{k}}\times\overrightarrow{\nabla}_{\mathbf{k}}\right]_z\right), \tag{S6}$$

用 $\star = \star_0\star_B$ 表示这两个独立的贡献。

这些指数项使我们能够进行泰勒展开，并据此收集 B_z 的各次幂项。这就是我们对谱函数和光电子发射强度进行一阶展开的方法。此外，如果 f_W 和 g_W 都不依赖于$\mathbf{R}$，那么两个 Weyl 符号的乘积可简化为

$$(fg)_W(\mathbf{R},\mathbf{k}) = f_W(\mathbf{k})\star g_W(\mathbf{k}) = f_W(\mathbf{k})\star_B g_W(\mathbf{k}), \tag{S7}$$

因为所有 $\nabla_{\mathbf{R}}$ 导数都会在 $\star_0$ 中消失。

此外，我们将使用以下关于 Weyl表象 [22]的恒等式。首先，算符的迹可以表示为其 Weyl 符号 [22, 23]上的积分

$$\mathrm{Tr}[\hat{O}] = \int \frac{\mathrm{d}^dR\,\mathrm{d}^dk}{(2\pi)^d}\,\mathrm{tr}[O_W(\mathbf{R},\mathbf{k})], \tag{S8}$$

其中，Tr 表示完整的迹，tr 表示对非空间自由度取的迹，而 d 表示空间维数。其次，两个算符的迹可以表示为

$$\mathrm{Tr}[\hat{f}\hat{g}] = \int \frac{\mathrm{d}^dR\,\mathrm{d}^dk}{(2\pi)^d}\,\mathrm{tr}[f_W\star g_W] = \int \frac{\mathrm{d}^dR\,\mathrm{d}^dk}{(2\pi)^d}\,\mathrm{tr}[f_W\, g_W], \tag{S9}$$

这是对两个 Weyl符号的通常乘积进行积分 [22] 为简洁起见，我们省略了 $\mathbf{R}$ 和 $\mathbf{k}$的依赖关系。如果算符多于两个，那么由于 Weyl符号的结合性质，我们总可以标记一个星积，并按照公式（S4）的规则，将其左因子和右因子视为独立的 Weyl符号。例如，

$$\mathrm{Tr}[\hat{f}\hat{g}\hat{h}] = \int \frac{\mathrm{d}^dR\,\mathrm{d}^dk}{(2\pi)^d}\mathrm{tr}\big[f_W\star g_W\star h_W\big] = \int \frac{\mathrm{d}^dR\,\mathrm{d}^dk}{(2\pi)^d}\mathrm{tr}\big[f_W\,(gh)_W\big] = \int \frac{\mathrm{d}^dR\,\mathrm{d}^dk}{(2\pi)^d}\mathrm{tr}\big[f_W\,(g_W\star h_W)\big]. \tag{S10}$$

后面的方程有助于简化光电子发射强度的表达式。

S2. 光电子发射强度一阶修正的推导

本节将完整推导以 Weyl 符号和 Moyal 星乘积表示的光电子发射强度，随后我们将利用这一推导求出弱磁场下光电子发射强度的一阶修正。

我们从光电子发射强度的标准表达式出发， [18, 20], 该表达式由费米黄金定则得到，保留了完整的矩阵结构，并将迹显式写成对内部自由度的求和， χ（例如发射电子的自旋）

$$I(\mathbf{k}_f,\omega) = \frac{2\pi}{\hbar}\sum_{\chi,n,m}\int \mathrm{d}^d q_i \,\langle \chi,\mathbf{k}_f|\,\hat{M}(\hat{\mathbf{R}},\hat{\mathbf{k}})\,|n,\mathbf{q}_i\rangle\,\langle n,\mathbf{q}_i|\,\hat{A}(\omega)\,|m,\mathbf{q}_i\rangle\,\langle m,\mathbf{q}_i|\,\hat{M}^\dagger(\hat{\mathbf{R}},\hat{\mathbf{k}})\,|\chi,\mathbf{k}_f\rangle\; f(\omega)\,\delta(\mathbf{q}_i-\mathbf{k}_f+\mathbf{G}). \tag{S11}$$

这里， $|n,\ \mathbf{q}\rangle$ 是布洛赫基， $|\chi,\ \mathbf{k}\rangle$ 是光电子的基底。标签 $n,\ m$ 是能带指标，$\mathbf{k}_f$ 是可测光电子的动力学动量，$\mathbf{q}_i$ 是布洛赫态的正则晶体动量，$\mathbf{G}$ 是倒格矢；必要时，它会将$\mathbf{k}_f$ 移入第一布里渊区，而 $f(\omega)$是费米-狄拉克分布。偶极算符矩阵元定义为

$$\hat{M}(\hat{\mathbf{R}},\hat{\mathbf{k}}) = \frac{e}{m}\mathbf{A}_{\mathrm{ph}}(\hat{\mathbf{R}})\cdot\hat{\mathbf{k}}, \tag{S12}$$

其中，$\mathbf{A}^{\mathrm{ph}}(\hat{\ }\mathbf{R})$ 是光子矢势，$\hat{\ }\mathbf{k} = \hat{\ }\boldsymbol{\kappa} + \frac{e}{\hbar}\mathbf{A}(\hat{\ }\mathbf{R})$ 是动力学动量算符，而$\mathbf{A}(\hat{\ }\mathbf{R})$ 是磁场的电磁矢势。

现在的思路是将该方程表示为算符的乘积，这样我们就可以利用式（S8）通过 Weyl 符号的星乘积来定义光电子发射强度，随后再进行泰勒展开，得到一阶展开。

为此，我们将谱函数算符表示为

$$\hat{A}^{(n,m)}(\omega) = \int \mathrm{d}^d q_i \;\; |n,\mathbf{q}_i\rangle\,\langle n,\mathbf{q}_i|\,\hat{A}(\omega)\,|m,\mathbf{q}_i\rangle\,\langle m,\mathbf{q}_i|\,. \tag{S13}$$

这使我们可以写成

$$I(\mathbf{k}_f,\omega) = \frac{2\pi}{\hbar}\sum_{\chi,n,m}\langle \chi,\mathbf{k}_f|\,\hat{M}(\hat{\mathbf{R}},\hat{\mathbf{k}})\hat{A}^{(n,m)}(\omega)\hat{M}^\dagger(\hat{\mathbf{R}},\hat{\mathbf{k}})\,|\chi,\mathbf{k}_f\rangle\, f(\omega), \tag{S14}$$

它是对.....的迹　　末态 χ 和 $\mathbf{k}_f$。利用迹的循环性质，我们也可以等价地写成

$$I(\mathbf{k}_f,\omega) = \frac{2\pi}{\hbar}\sum_{\chi,n,m}\mathrm{Tr}\Big\{\hat{A}^{(n,m)}(\omega)\hat{M}^\dagger\hat{P}^{\chi,\mathbf{k}_f}\hat{M}\Big\}f(\omega), \tag{S15}$$

其中我们引入了投影算符 $\hat{\ }P^{\chi,\ \mathbf{k}_f} = |\chi,\ \mathbf{k}_f\rangle\,\langle\chi,\ \mathbf{k}_f|$。

虽然这种写法不同于标准的光电子发射强度表达式，但它使我们能够将式 (S11) 表示为一组算符乘积的迹。由式 (S10) 可得

$$I(\mathbf{k}_f,\omega) = \frac{2\pi}{\hbar}\sum_{\chi,n,m}\int\frac{\mathrm{d}^d R\,\mathrm{d}^d k}{(2\pi)^d}\mathrm{tr}\Big\{A_W^{(n,m)}\left(M_W^\dagger\star P_W^{\chi,\mathbf{k}_f}\star M_W\right)\Big\}f(\omega), \tag{S16}$$

其中，tr 表示对内部自由度（例如自旋）取迹。此时，光电子发射强度是谱函数算符 ($A_W^{(n,m)}$)、矩阵元偶极算符 (M_W) 和光电子投影算符 ($P^{\chi,\ \mathbf{k}_f}_W$) 的 Weyl 符号的积分。

括号中剩余的星积仅涉及偶极算符和光电子投影算符。我们

在第 S2A 和S2B 节中详细展示，这些算符的 Weyl 符号为

$$M_W(\mathbf{R},\mathbf{k}) = \frac{e\hbar}{m}\,\mathbf{A}_{\rm ph}(\mathbf{R})\cdot\mathbf{k}, \tag{S17}$$

$$P_W^{\chi,\mathbf{k}_f}(\mathbf{R},\mathbf{k}) = |\chi\rangle\langle\chi|\;\delta(\mathbf{k}-\mathbf{k}_f). \tag{S18}$$

我们看到， $M_W(\mathbf{R},\ \mathbf{k})$ 是裸偶极算符矩阵元，其中 $\hat{}\mathbf{R}$ 被$\mathbf{R}$ 取代，$\hat{}\mathbf{k}$ 被动量相空间变量$\mathbf{k}$取代。因此 M_W 不依赖于 B_z 。在偶极近似下，$\mathbf{A}^{\rm ph}$ 也不再依赖$\mathbf{R}$ ，我们将采用

$$M_W(\mathbf{R},\mathbf{k}) \approx M^{(0)}(\mathbf{k}) = \frac{e\hbar}{m}\,\mathbf{A}_{\rm ph}\cdot\mathbf{k}. \tag{S19}$$

由于 $M^{(0)}$和 $P^{\chi,\ \mathbf{k}_W\ f}$都不依赖于$\mathbf{R}$，由式（S7）可得 $M^{(0)\dagger}\star P^{\chi,\ \mathbf{k}W\ f}\star M^{(0)} = M^{(0)\dagger}\star_B P^{\chi,\ \mathbf{k}_W\ f}\star_B M^{(0)}$。随后对 B_z进行一阶泰勒展开，得到

$$M^{(0)*}\star_B P_W^{\chi,\mathbf{k}_f}\star_B M^{(0)} = \Big\{|M^{(0)}|^2\,|\chi\rangle\langle\chi| - \frac{eB_z}{\hbar}\big[(\mathbf{S}\times\nabla_{\mathbf{k}})_z + \sigma_{{\rm ph},z}\big]\,|\chi\rangle\langle\chi|\Big\}\delta(\mathbf{k}-\mathbf{k}_f) + \mathcal{O}(B_z^2), \tag{S20}$$

with

$$\mathbf{S}(\mathbf{k}) = {\rm Im}\big[M^{(0)*}\nabla_{\mathbf{k}}M^{(0)}\big] = \Big(\frac{e\hbar}{m}\Big)^2{\rm Im}\big[(\mathbf{A}^*_{\rm ph}\cdot\mathbf{k})\,\mathbf{A}_{\rm ph}\big], \tag{S21}$$

$$\sigma_{{\rm ph},z} = \frac{1}{2}{\rm Im}\big[\nabla_{\mathbf{k}}M^{(0)}\times\nabla_{\mathbf{k}}M^{(0)*}\big]_z = \frac{1}{2}\Big(\frac{e\hbar}{m}\Big)^2{\rm Im}\big[\mathbf{A}_{\rm ph}\times\mathbf{A}^*_{\rm ph}\big]_z. \tag{S22}$$

谱函数也会受到磁场的修正，因此我们将 $A_W^{(n,m)} = A^{(0)\,(n,\ m)} + A^{(1)\,(n,\ m)}$ $\ldots$ $A^{(0)\ n\ m}$ $A^{(1)\ n\ m}$ B_z + 展开，其中$(,\ )$为零场极限，而$(,\ )$与成正比。保留B_z的一阶项后，光电子发射强度变为

$$\begin{aligned} I(\mathbf{k}_f,\omega;B_z) = \frac{2\pi}{\hbar}\sum_{\chi,n,m}\int\frac{{\rm d}^dR\,{\rm d}^dk}{(2\pi)^d}{\rm tr}\Big\{&|M^{(0)}|^2\big(A^{(0)\,(n,m)} + A^{(1)\,(n,m)}\big)\,|\chi\rangle\langle\chi| \\ &+ \frac{eB_z}{\hbar}\Big(\big[\mathbf{S}\times\nabla_{\mathbf{k}}\big(A^{(0)\,(n,m)}\big)\big]_z + \sigma_{{\rm ph},z}\,A^{(0)\,(n,m)}\Big)\,|\chi\rangle\langle\chi|\Big\}\delta(\mathbf{k}-\mathbf{k}_f)f(\omega). \end{aligned} \tag{S23}$$

在零场极限下，该公式导出常规的光电子发射结果，

$$\begin{aligned} I^{(0)}(\mathbf{k}_f,\omega) &= I(\mathbf{k}_f,\omega;B_z=0) \\ &= \frac{2\pi}{\hbar}\sum_{\chi,n,m}\int\frac{{\rm d}^dR\,{\rm d}^dk}{(2\pi)^d}{\rm tr}\big\{|M^{(0)}(\mathbf{k})|^2A^{(0)\,(n,m)}(\mathbf{R},\mathbf{k},\omega)\,|\chi\rangle\langle\chi|\;\delta(\mathbf{k}-\mathbf{k}_f)\big\}\;f(\omega) \\ &= \frac{2\pi}{\hbar}|M^{(0)}(\mathbf{k}_f)|^2\sum_{\chi,n,m}\int\frac{{\rm d}^dR\,{\rm d}^dk}{(2\pi)^d}{\rm tr}\big\{A^{(0)\,(n,m)}(\mathbf{R},\mathbf{k},\omega)\,|\chi\rangle\langle\chi|\;\delta(\mathbf{k}-\mathbf{k}_f)\big\}\;f(\omega) \\ &= \frac{2\pi}{\hbar}|M^{(0)}(\mathbf{k}_f)|^2\sum_{\chi,n,m}{\rm Tr}\big[\hat{A}^{(0)\,(n,m)}(\omega)\;\hat{P}^{\chi,\mathbf{k}_f}\big]\;f(\omega) \\ &= \frac{2\pi}{\hbar}|M^{(0)}(\mathbf{k}_f)|^2\sum_{\chi,n,m}\langle\chi,\mathbf{k}_f|\,\hat{A}^{(0)\,(n,m)}(\omega)\,|\chi,\mathbf{k}_f\rangle\;\;f(\omega) \\ &= \frac{2\pi}{\hbar}|M^{(0)}(\mathbf{k}_f)|^2{\rm tr}\big[\langle\mathbf{k}_f|\hat{A}^{(0)}(\omega)|\mathbf{k}_f\rangle\big]\;f(\omega) \\ &= \frac{2\pi}{\hbar}|M^{(0)}(\mathbf{k}_f)|^2A^{(0)}(\mathbf{q}_i,\omega)\;f(\omega), \end{aligned} \tag{S24}$$

这就是正文中的公式（6），其中矩阵元在 $\mathbf{k}f$ 处计算，利用分布恒等式$|M^{(0)}(\mathbf{k})|^2\delta(\mathbf{k}-\mathbf{k}f) = |M^{(0)}(\mathbf{k}f)|^2\delta(\mathbf{k}-\mathbf{k}f)$，从而只剩下对两个 Weyl 符号乘积的积分，即

恰好是算符 $\hat{A}^{(0)\,(n,m)}$ 与 $\hat{P}^{\chi}$的乘积的迹，$\mathbf{k}_f$ 利用公式（S9）。随后利用布洛赫基的完备性进行能带求和：根据公式（S13）中的定义，由于 $\hat{A}^{(0)}$ 在晶体动量表象中是对角的，对 χ 的求和变为对内部自由度的迹。由于 $|\mathbf{k}_f\rangle$ 只与晶体动量 $\mathbf{q}_i = \mathbf{k}_f - \mathbf{G}$重叠，其中 $\mathbf{G}$ 是将 $\mathbf{k}_f$ 折叠进第一布里渊区的唯一倒格矢，最后一行就是光电子所观测到的谱函数。对于 B_z 中的一阶表达式，我们有

$$I^{(1)}(\mathbf{k}_f,\omega;B_z) = \frac{2\pi}{\hbar}\sum_{\chi,n,m}\int \frac{\mathrm{d}^d R\,\mathrm{d}^d k}{(2\pi)^d}\mathrm{tr}\Big\{|M^{(0)}|^2 A^{(1)\,(n,m)}\,|\chi\rangle\langle\chi| + \frac{eB_z}{\hbar}\Big(\big[\mathbf{S}\times\nabla_{\mathbf{k}}\big(A^{(0)\,(n,m)}\big)\big]_z + \sigma_{\mathrm{ph},z}\,A^{(0)\,(n,m)}\Big)|\chi\rangle\langle\chi|\Big\}\delta(\mathbf{k}-\mathbf{k}_f)f(\omega). \tag{S25}$$

不过请注意，$\mathbf{S}$ 和$\sigma_{\mathrm{ph},\,z}$ 根据方程（S21）和（S22）仅在$\mathbf{A}_{\mathrm{ph}}$ 为虚数时才非零。圆偏振光符合这一条件，而线偏振光则不符合。因此，将讨论限定在线偏振光的情况下，我们得到

$$\begin{aligned} I^{(1)}(\mathbf{k}_f,\omega,B_z) &= \frac{2\pi}{\hbar}\sum_{\chi,n,m}\int \frac{\mathrm{d}^d R\,\mathrm{d}^d k}{(2\pi)^d}\mathrm{tr}\big\{|M^{(0)}|^2 A^{(1)\,(n,m)}\,|\chi\rangle\langle\chi|\,\big\}\delta(\mathbf{k}-\mathbf{k}_f)f(\omega) \\ &= \frac{2\pi}{\hbar}|M^{(0)}(\mathbf{k}_f)|^2 A^{(1)}(\mathbf{q}_i,\omega)\;f(\omega), \end{aligned} \tag{S26}$$

这就是正文中的方程（7），其中同样有$\mathbf{q}_i = \mathbf{k}_f - \mathbf{G}$，推导步骤与方程（S24）类似。

因此，线偏振光下光电子发射强度的一阶场修正，等价于谱函数的场修正乘以测量中已有的零场矩阵元效应。我们将在第 $A^{(1)}$ 节中，通过将 G_W 的 Dyson方程按 B_z 展开至线性阶，来计算S4。

在以下小节中，我们给出$\hat{M}$和$\hat{P}^{\chi,\,\mathbf{k}_f}$的显式 Weyl 符号。

A. 偶极矩阵元 M_W 的 Weyl 符号

我们从偶极算符的 Weyl 符号开始，

$$\begin{aligned} M_W(\mathbf{R},\mathbf{k}) &= \int \mathrm{d}^d r\, e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} e^{-i\Phi(\mathbf{R},\mathbf{r})}\,\langle\mathbf{R}+\tfrac{\mathbf{r}}{2}|\,\frac{e}{m}\mathbf{A}_{\mathrm{ph}}(\hat{\mathbf{R}})\cdot\hat{\mathbf{k}}\,|\mathbf{R}-\tfrac{\mathbf{r}}{2}\rangle \\ &= \int \mathrm{d}^d r\, e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} e^{-i\Phi(\mathbf{R},\mathbf{r})}\,\langle\mathbf{R}+\tfrac{\mathbf{r}}{2}|\,\frac{e}{m}\mathbf{A}_{\mathrm{ph}}(\hat{\mathbf{R}})\cdot\big[\hat{\boldsymbol{\kappa}}+\frac{e}{\hbar}\mathbf{A}(\hat{\mathbf{R}})\big]\,|\mathbf{R}-\tfrac{\mathbf{r}}{2}\rangle\,. \end{aligned} \tag{S27}$$

为保持一般性，我们保留$\mathbf{R}$ 对$\mathbf{A}_{\mathrm{ph}}(\hat{\mathbf{R}})$的依赖关系。矢势在位置基中是对角的，因此可以作用于左侧。我们首先将 M_W分成两部分，即 $M_W = M_W^k + M_W^A$，其中

$$M_W^k(\mathbf{R},\mathbf{k}) = \int \mathrm{d}^d r\, e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} e^{-i\Phi(\mathbf{R},\mathbf{r})}\,\langle\mathbf{R}+\tfrac{\mathbf{r}}{2}|\,\frac{e}{m}\mathbf{A}_{\mathrm{ph}}(\hat{\mathbf{R}})\cdot\hat{\boldsymbol{\kappa}}\,|\mathbf{R}-\tfrac{\mathbf{r}}{2}\rangle\,, \tag{S28}$$

$$M_W^A(\mathbf{R},\mathbf{k}) = \int \mathrm{d}^d r\, e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} e^{-i\Phi(\mathbf{R},\mathbf{r})}\,\langle\mathbf{R}+\tfrac{\mathbf{r}}{2}|\,\frac{e}{m}\mathbf{A}_{\mathrm{ph}}(\hat{\mathbf{R}})\cdot\frac{e}{\hbar}\mathbf{A}(\hat{\mathbf{R}})\,|\mathbf{R}-\tfrac{\mathbf{r}}{2}\rangle\,. \tag{S29}$$

第二个方程给出

$$\begin{aligned} M_W^A(\mathbf{R},\mathbf{k}) &= \int \mathrm{d}^d r\, e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} e^{-i\Phi(\mathbf{R},\mathbf{r})}\,\frac{e}{m}\mathbf{A}_{\mathrm{ph}}(\mathbf{R}+\tfrac{\mathbf{r}}{2})\cdot\frac{e}{\hbar}\mathbf{A}(\mathbf{R}-\tfrac{\mathbf{r}}{2})\langle\mathbf{R}+\tfrac{\mathbf{r}}{2}|\mathbf{R}-\tfrac{\mathbf{r}}{2}\rangle \\ &= \int \mathrm{d}^d r\, e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} e^{-i\Phi(\mathbf{R},\mathbf{r})}\,\frac{e}{m}\mathbf{A}_{\mathrm{ph}}(\mathbf{R}+\tfrac{\mathbf{r}}{2})\cdot\frac{e}{\hbar}\mathbf{A}(\mathbf{R}-\tfrac{\mathbf{r}}{2})\,\delta(\mathbf{r}) \\ &= \frac{e}{m}\mathbf{A}_{\mathrm{ph}}(\mathbf{R})\cdot\frac{e}{\hbar}\mathbf{A}(\mathbf{R}), \end{aligned} \tag{S30}$$

因为 $\Phi(\mathbf{R},\,\mathbf{0}) = 0$。

在 M_W^k 的方程中，$\hat{\boldsymbol{\kappa}}$ 算符可以直接作为导数作用，但事实证明，这需要对狄拉克 δ 函数的导数进行细致处理。因此，我们选择先使用动量闭合关系，并引入变量 $\mathbf{q}$，这样一来，对狄拉克 δ 函数的处理就变得简单明了。这得到

$$M_W^k(\mathbf{R},\mathbf{k}) = \frac{e}{m}\int \frac{\mathrm{d}^d q}{(2\pi)^d}\int \mathrm{d}^d r\, e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} e^{-i\Phi(\mathbf{R},\mathbf{r})}\mathbf{A}_{\mathrm{ph}}(\mathbf{R}+\tfrac{\mathbf{r}}{2})\cdot\mathbf{q}\,\langle \mathbf{R}+\tfrac{\mathbf{r}}{2}|\mathbf{q}\rangle\langle\mathbf{q}|\mathbf{R}-\tfrac{\mathbf{r}}{2}\rangle. \tag{S31}$$

对真实动量而非晶体动量进行$\mathbf{q}$ 积分。因此，波函数是平面波态，使得

$$\begin{aligned}
M_W^k(\mathbf{R},\mathbf{k}) &= \frac{e}{m}\int \mathrm{d}^d r\, e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} e^{-i\Phi(\mathbf{R},\mathbf{r})}\mathbf{A}_{\mathrm{ph}}(\mathbf{R}+\tfrac{\mathbf{r}}{2})\cdot\int \frac{\mathrm{d}^d q}{(2\pi)^d}\mathbf{q}\; e^{i\mathbf{q}\cdot(\mathbf{R}+\frac{\mathbf{r}}{2})} e^{-i\mathbf{q}\cdot(\mathbf{R}-\frac{\mathbf{r}}{2})} \\
&= \frac{e}{m}\int \mathrm{d}^d r\, e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} e^{-i\Phi(\mathbf{R},\mathbf{r})}\mathbf{A}_{\mathrm{ph}}(\mathbf{R}+\tfrac{\mathbf{r}}{2})\cdot(-i\nabla_{\mathbf{r}})\int \frac{\mathrm{d}^d q}{(2\pi)^d} e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}} \\
&= \frac{e}{m}\int \mathrm{d}^d r\, e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} e^{-i\Phi(\mathbf{R},\mathbf{r})}\mathbf{A}_{\mathrm{ph}}(\mathbf{R}+\tfrac{\mathbf{r}}{2})\cdot(-i\nabla_{\mathbf{r}})\delta(\mathbf{r}) \\
&= \frac{e}{m}\int \mathrm{d}^d r\, \left[i\nabla_{\mathbf{r}}\cdot\left(e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} e^{-i\Phi(\mathbf{R},\mathbf{r})}\mathbf{A}_{\mathrm{ph}}(\mathbf{R}+\tfrac{\mathbf{r}}{2})\right)\right]\delta(\mathbf{r}) \\
&= \frac{e}{m}\int \mathrm{d}^d r\, \left\{[\mathbf{k}+\nabla_{\mathbf{r}}\Phi(\mathbf{R},\mathbf{r})]\cdot\mathbf{A}_{\mathrm{ph}}(\mathbf{R}+\tfrac{\mathbf{r}}{2}) + i\nabla_{\mathbf{r}}\cdot\mathbf{A}_{\mathrm{ph}}(\mathbf{R}+\tfrac{\mathbf{r}}{2})\right\} e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} e^{-i\Phi(\mathbf{R},\mathbf{r})}\,\delta(\mathbf{r}) \\
&= \frac{e}{m}\left\{[\mathbf{k}+\nabla_{\mathbf{r}}\Phi(\mathbf{R},0)]\cdot\mathbf{A}_{\mathrm{ph}}(\mathbf{R}) + \nabla_{\mathbf{r}}\cdot\mathbf{A}_{\mathrm{ph}}(\mathbf{R}+\tfrac{\mathbf{r}}{2})\big|_{\mathbf{r}=0}\right\} e^{-i\Phi(\mathbf{R},0)}.
\end{aligned} \tag{S32}$$

要得到偶极算符，必须假设$\mathbf{A}^{\mathrm{ph}}$ 处于库仑规范，因此 $\nabla_{\mathbf{r}}\cdot\mathbf{A}_{\mathrm{ph}} = 0$。此外，$\boldsymbol{\Phi(\mathbf{R},0)} = 0$ 以及

$$\nabla_{\mathbf{r}}\Phi(\mathbf{R},\mathbf{r}) = -\frac{e}{\hbar}\nabla_{\mathbf{r}}\int_{\mathbf{R}-\frac{\mathbf{r}}{2}}^{\mathbf{R}+\frac{\mathbf{r}}{2}}\mathrm{d}\boldsymbol{\ell}\cdot\mathbf{A}(\boldsymbol{\ell}) = -\frac{e}{\hbar}\left[\frac{1}{2}\mathbf{A}(\mathbf{R}+\tfrac{\mathbf{r}}{2}) - \frac{-1}{2}\mathbf{A}(\mathbf{R}-\tfrac{\mathbf{r}}{2})\right]\xrightarrow{\mathbf{r}\to 0} -\frac{e}{\hbar}\mathbf{A}(\mathbf{R}), \tag{S33}$$

由此得到结果

$$M_W^k(\mathbf{R},\mathbf{k}) = \frac{e}{m}\left[\mathbf{k}-\frac{e}{\hbar}\mathbf{A}(\mathbf{R})\right]\cdot\mathbf{A}_{\mathrm{ph}}(\mathbf{R}). \tag{S34}$$

由于现在处理的是数而非算符，因子的顺序并不重要，并且我们看到，依赖$\mathbf{A}$的项恰好与 M_W^A相反。将其与 M_W^A结合，我们得到

$$M_W(\mathbf{R},\mathbf{k}) = \frac{e}{m}\mathbf{A}_{\mathrm{ph}}(\mathbf{R})\cdot\mathbf{k}. \tag{S35}$$

这也表明，Weyl 符号中的$\mathbf{k}$ 表示动力学动量，因此不具有内部场依赖性。

B. 投影算符的 Weyl 符号 $P^{\chi,\ \mathbf{k}_f}_{W}$

接下来我们聚焦于投影算符 $\hat{P}^{\chi,\ \mathbf{k}^f} = |\chi,\ \mathbf{k}f\rangle\langle\chi,\ \mathbf{k}_f|$。这里，$\mathbf{k}f$是出射光电子的动量，且为固定值。因此，我们希望计算

$$P_W^{\chi,\mathbf{k}_f}(\mathbf{R},\mathbf{k}) = \int \mathrm{d}^d r\, e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} e^{-i\Phi(\mathbf{R},\mathbf{r})}\langle\mathbf{R}+\tfrac{\mathbf{r}}{2}|\chi,\mathbf{k}_f\rangle\langle\chi,\mathbf{k}_f|\mathbf{R}-\tfrac{\mathbf{r}}{2}\rangle. \tag{S36}$$

这里微妙的问题在于，$\mathbf{k}f$ 所描述的是什么态。在磁场存在的情况下，自由哈密顿量的本征态不再是简单的平面波，而是会获得一个类似于 Φ 的额外相位因子。事实上，我们要寻找的是动力学动量算符的本征态，

$$\left[-i\nabla_{\mathbf{R}}+\frac{e}{\hbar}\mathbf{A}(\hat{\mathbf{R}})\right]\psi(\mathbf{R},\mathbf{k}_f) = \mathbf{k}_f\psi(\mathbf{R},\mathbf{k}_f), \tag{S37}$$

其形式为

$$\psi(\mathbf{R},\mathbf{k}_f)=\frac{1}{(2\pi)^{d/2}}e^{i\mathbf{k}_f\cdot\mathbf{R}-i\frac{e}{\hbar}\int_{\mathbf{R}_0}^{\mathbf{R}}\mathrm{d}\boldsymbol{\ell}\cdot\mathbf{A}(\boldsymbol{\ell})}, \tag{S38}$$

以$\mathbf{R}_0$ 为参考点。
归一化的选取使得 $\int\mathrm{d}^dR\psi^*(\mathbf{R},\mathbf{k}f)\psi(\mathbf{R},\mathbf{k}'_f)=\delta(\mathbf{k}f-\mathbf{k}'_f)$。接着，我们写作 $\psi(\mathbf{R},\mathbf{k}f)=\langle\mathbf{R}|\mathbf{k}f\rangle$ 以及 $|\chi,\mathbf{k}f\rangle=|\chi\rangle\,|\mathbf{k}f\rangle$，由此得到

$$\begin{aligned}P_W^{\chi,\mathbf{k}_f}(\mathbf{R},\mathbf{k})&=\frac{|\chi\rangle\langle\chi|}{(2\pi)^d}\int\mathrm{d}^dr\,e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}e^{-i\Phi(\mathbf{R},\mathbf{r})}e^{i\mathbf{k}_f\cdot(\mathbf{R}+\frac{\mathbf{r}}{2})-i\frac{e}{\hbar}\int_{\mathbf{R}_0}^{\mathbf{R}+\frac{\mathbf{r}}{2}}\mathrm{d}\boldsymbol{\ell}\cdot\mathbf{A}(\boldsymbol{\ell})}e^{-i\mathbf{k}_f\cdot(\mathbf{R}-\frac{\mathbf{r}}{2})+i\frac{e}{\hbar}\int_{\mathbf{R}_0}^{\mathbf{R}-\frac{\mathbf{r}}{2}}\mathrm{d}\boldsymbol{\ell}\cdot\mathbf{A}(\boldsymbol{\ell})}\\&=\frac{|\chi\rangle\langle\chi|}{(2\pi)^d}\int\mathrm{d}^dr\,e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}e^{-i\Phi(\mathbf{R},\mathbf{r})}e^{i\mathbf{k}_f\cdot\mathbf{r}}e^{-i\frac{e}{\hbar}\int_{\mathbf{R}-\frac{\mathbf{r}}{2}}^{\mathbf{R}+\frac{\mathbf{r}}{2}}\mathrm{d}\boldsymbol{\ell}\cdot\mathbf{A}(\boldsymbol{\ell})}.\end{aligned} \tag{S39}$$

我们注意到，最后一个指数项中的 $+i\Phi(\mathbf{R},\mathbf{r})$ 会与 Wigner变换中的 $-i\Phi(\mathbf{R},\mathbf{r})$ 抵消。剩下的积分是一个狄拉克 δ 函数，

$$P_W^{\chi,\mathbf{k}_f}(\mathbf{R},\mathbf{k})=\frac{|\chi\rangle\langle\chi|}{(2\pi)^d}\int\mathrm{d}^dr\,e^{-i(\mathbf{k}-\mathbf{k}_f)\cdot\mathbf{r}}=|\chi\rangle\langle\chi|\,\delta(\mathbf{k}-\mathbf{k}_f). \tag{S40}$$

因此， $P^{\chi}{}_{,W}{}^{\mathbf{k}_f}$ 也与磁场和$\mathbf{R}$无关。

S3. 格林函数一阶修正的推导

本节推导弱磁场下格林函数的一阶修正，并保留一般形式的自能；这对于求得谱函数的修正是必要的。

我们首先将谱函数与延迟格林函数联系起来。注意到，方程（S24）和（S26）中的迹可以写成

$$\mathrm{Tr}[\hat{A}^{(j)}(\mathbf{q}_i,\omega)]=\sum_n A^{(j)(n,n)}(\mathbf{q}_i,\omega), \tag{S41}$$

对于 $j=0$，$\mathbf{1}$，我们可以将谱函数的矩阵元与格林函数矩阵元的虚部对应起来，即

$$A^{(j)(n,n)}(\mathbf{q}_i,\omega)=-\frac{1}{\pi}\mathrm{Im}\,G^{(j)(n,n)}(\mathbf{q}_i,\omega). \tag{S42}$$

这里， $G^{(0)}$ 和 $G^{(1)}$ 分别是格林函数的零场部分和线性-B_z 部分

$$G^{n,m}(\mathbf{q}_i,\omega)=\langle n,\mathbf{q}_i|\left[\omega_+-\hat{H}-\hat{\Sigma}\right]^{-1}|m,\mathbf{q}_i\rangle, \tag{S43}$$

其中 $\omega_+=\omega+i0$。由于布洛赫基适用于晶体结构，实际计算将针对 $G^{n,\,m}$；而对于关于 B_z 的展开，使用算符表示的 Weyl 符号会更合适，

$$\hat{G}(\omega)=\sum_{nm}\int\mathrm{d}^dq_i\,|n,\mathbf{q}_i\rangle\,G^{(n,m)}(\mathbf{q}_i,\omega)\,\langle m,\mathbf{q}_i|=[\omega_+-\hat{H}-\hat{\Sigma}]^{-1}. \tag{S44}$$

因此，展开之后我们将切换回布洛赫基表示。
用 Weyl 符号表示时，格林函数可由下式得到

$$\left[\omega_+-H_W(\mathbf{R},\mathbf{k})-\Sigma_W(\mathbf{R},\mathbf{k},\omega)\right]\star G_W(\mathbf{R},\mathbf{k},\omega)=1, \tag{S45}$$

哈密顿量和自能的 Weyl符号 H_W 和 Σ_W。

为获得弱磁场中的一阶修正，我们将公式（S45）中的所有 Weyl符号按 B_z 的幂次展开，

$$H_W = H^{(0)} + H^{(1)} + \dots, \qquad \Sigma_W = \Sigma^{(0)} + \Sigma^{(1)} + \dots, \qquad G_W = G^{(0)} + G^{(1)} + \dots, \tag{S46}$$

其中，上标 (N) 表示与 B_z^N 成正比。此展开与星积的展开同时进行

$$\star = \star_0 \star_B = \star_0 \left[1 - \frac{ieB_z}{2\hbar}(\overleftarrow{\nabla}_{\mathbf{k}} \times \overrightarrow{\nabla}_{\mathbf{k}})_z + \dots\right]. \tag{S47}$$

对于零场方程

$$\left[\omega_+ - H_W^{(0)}(\mathbf{R},\mathbf{k}) - \Sigma_W^{(0)}(\mathbf{R},\mathbf{k},\omega)\right] \star_0 G_W^{(0)}(\mathbf{R},\mathbf{k},\omega) = 1, \tag{S48}$$

我们注意到，由于零场对象具有平移不变性，所有涉及的 Weyl 符号都与$\mathbf{R}$无关。因此， $\star_0$ 化为标准乘法，Weyl 符号则化为标准的$\mathbf{k}$ 依赖矩阵元。因此，零场格林函数由通常的动量分辨方程求得

$$\left[\omega_+ - H^{(0)}(\mathbf{k}) - \Sigma^{(0)}(\mathbf{k},\omega)\right] G^{(0)}(\mathbf{k},\omega) = 1, \tag{S49}$$

该方程通常作为布洛赫基中的矩阵方程求解。收集$\mathcal{O}(B_z)$ 阶的项，可得

$$\begin{aligned}\left[\omega_+ - H^{(0)}(\mathbf{k}) - \Sigma^{(0)}(\mathbf{k},\omega)\right] G^{(1)}(\mathbf{k},\omega) - \left[H^{(1)}(\mathbf{k}) + \Sigma^{(1)}(\mathbf{k},\omega)\right] G^{(0)}(\mathbf{k},\omega) \\ + \frac{ieB_z}{2\hbar}\left\{\nabla_{\mathbf{k}}\left[H^{(0)}(\mathbf{k}) + \Sigma^{(0)}(\mathbf{k},\omega)\right] \times \nabla_{\mathbf{k}} G^{(0)}(\mathbf{k},\omega)\right\}_z = 0,\end{aligned} \tag{S50}$$

这里，我们可以再次将 Weyl 符号视为常规的$\mathbf{k}$ 依赖矩阵元。重新整理式（S50）以求得 $G^{(1)}$，并定义

$$\tilde{\mathbf{v}}(\mathbf{k},\omega) = \hbar^{-1}\nabla_{\mathbf{k}}\left[H^{(0)}(\mathbf{k}) + \Sigma^{(0)}(\mathbf{k},\omega)\right] \tag{S51}$$

将其作为重整化能带速度，并利用恒等式 $\nabla_{\mathbf{k}} G^{(0)} = \hbar G^{(0)}\tilde{\mathbf{v}} G^{(0)}$ ，去掉$\mathbf{k}$ ω标记后，得到

$$G^{(1)} = G^{(0)}\left[H^{(1)} + \Sigma^{(1)} + \frac{ie\hbar B_z}{2}(\tilde{v}_y G^{(0)} \tilde{v}_x - \tilde{v}_x G^{(0)} \tilde{v}_y)\right] G^{(0)}. \tag{S52}$$

这是格林函数的一阶修正。项 $H^{(1)} + \Sigma^{(1)}$ 同时包含局域轨道磁矩和塞曼分裂，两者均经过自能重整化。由于我们只考虑弱磁场，因此只需保留最低阶修正。更强的磁场可以通过进行同样的展开至 $\mathcal{O}(B_z^2)$ 及更高阶来处理。

依赖于 B_z 的哈密顿量 $H^{(1)}$ 来自一阶微扰理论，

$$H^{(1)} = \mu_B B_z (L_z + g_s S_z), \tag{S53}$$

其中， μ_B 是玻尔磁子， g_s 是电子自旋 g 因子，而 L_z 和 S_z 分别定义轨道角动量算符和自旋角动量算符，分别表征局域轨道磁矩和塞曼分裂。$\Sigma^{(1)}$ 的形式取决于所考虑的自能修正类型；无论其形式如何，它都作为对 $H^{(1)}$ 的修正，同时重整化轨道磁矩和塞曼分裂。

S4. 谱函数一阶修正的推导

在最后这一部分，我们将展示，式（S52）中定义的格林函数迹的虚部，直接与裸能带结构的贝里曲率以及经自能重整化的轨道磁矩相关。

我们从 $G^{(0)}$ 的谱表示开始，

$$G^{(0)}(\mathbf{k},\omega)=\sum_n \frac{|n^{(0)},\mathbf{k}\rangle\langle n^{(0)},\mathbf{k}|}{\omega_+-\epsilon_n^{(0)}(\mathbf{k})-\Sigma_n^{(0)}(\mathbf{k},\omega)}=\sum_n \frac{|n^{(0)},\mathbf{k}\rangle\langle n^{(0)},\mathbf{k}|}{\omega_+-E_n^{(0)}(\mathbf{k},\omega)}, \tag{S54}$$

其中，我们作出通常的假设，即自能为能带对角形式，并选择 $|n^{(0)}$、$\mathbf{k}\rangle$ 和 $\langle n^{(0)},\ \mathbf{k}|$ 作为 $H^{(0)}(\mathbf{k})+\Sigma^{(0)}(\mathbf{k}\ \omega)$ 的本征态双正交基，其复本征值为 $E_n^{(0)}(\mathbf{k}\ \omega)=\epsilon_n^{(0)}(\mathbf{k})+\Sigma_n^{(0)}(\mathbf{k}\ \omega)$。只要自能保持能带对角形式，标签 n 就仍是能带指标；此时 $\epsilon_n^{(0)}(\mathbf{k})$ 是不存在自能时相应的布洛赫能带能量。对虚部取迹会得到光电子发射强度中的谱函数贡献，

$$\begin{aligned}A^{(0)}(\mathbf{k},\omega)&=\mathrm{Tr}[\hat{A}^{(0)}(\mathbf{k},\omega)]=-\frac{1}{\pi}\mathrm{Im}\,\mathrm{Tr}[G^{(0)}(\mathbf{k},\omega)]\\&=-\frac{1}{\pi}\sum_n\frac{\mathrm{Im}\,\Sigma_n^{(0)}(\mathbf{k},\omega)}{\left[\omega-\epsilon_n^{(0)}(\mathbf{k})-\mathrm{Re}\,\Sigma_n^{(0)}(\mathbf{k},\omega)\right]^2+\left[\mathrm{Im}\,\Sigma_n^{(0)}(\mathbf{k},\omega)\right]^2}.\end{aligned} \tag{S55}$$

计算式 (S52) 的数值结果并不要求自能满足能带对角假设，但若要将角分辨光电子能谱的光电子发射强度分解为依赖能带的 $\epsilon_n^{(0)}$和自能 $\Sigma_n^{(0)}$表达式，则必须作此假设。写出式 (S55) 中标准的角分辨光电子能谱光电子发射强度时，也隐含地要求作出相同假设。若自能使能带发生混合，仍可如式 (S54) 那样进行对角化，但此时 n对应于重整化能带指标，而本征值 $E_n^{(0)}$在形式上不再允许将$\epsilon_n^{(0)}$与 $\Sigma_n^{(0)}$分开。不过，我们注意到，可以定义能带非对角自能（当 $n\neq m$ 时），如下：

$$\Sigma^{(n,m)}(\mathbf{k},\omega)=\frac{\langle n^{(0)},\mathbf{k}|\left[\Sigma_{\mathrm{orb}}(\mathbf{k},\omega),H_{\mathrm{orb}}(\mathbf{k})\right]|m^{(0)},\mathbf{k}\rangle}{\epsilon_m(\mathbf{k})-\epsilon_n(\mathbf{k})}. \tag{S56}$$

若自能在轨道基中为对角形式（a，b），则可将其简化为 o

$$\Sigma^{(n,m)}(\mathbf{k},\omega)=\frac{\sum_{a,b}c_{an}^*c_{bm}(\Sigma_{\mathrm{orb}}^{(a,a)}(\mathbf{k},\omega)-\Sigma_{\mathrm{orb}}^{(b,b)}(\mathbf{k},\omega))H_{\mathrm{orb}}^{(a,b)}(\mathbf{k})}{\epsilon_m(\mathbf{k})-\epsilon_n(\mathbf{k})}, \tag{S57}$$

c_{an} 其中本征矢连接轨道基与能带基。这表明，该效应在能带交叉附近占主导地位。然而，如果这些能带的主要轨道贡献具有相同的自能（例如由对称性导致），那么非对角自能项也将为零。此外，如果哈密顿量导致两个态之间的重叠为零（即两个主要轨道分量之间没有相互作用），非对角自能也会很小。在许多情况下，我们关注的能带交叉源自自能相同或相近的能带，因此在这些情况下，我们的假设最为合理。不过，该假设在能带交叉处恰好失效，在考虑强关联电子结构（例如哈伯德带）时也会失效。本文不讨论这些情况。

将式（S54）代入式（S52并利用 Tr 取迹 $G^{(1)}(\mathbf{k}\ \omega)=\sum_n\langle n^{(0)},\ \mathbf{k}|G^{(1)}(\mathbf{k}\ \omega)|n^{(0)},\ \mathbf{k}\rangle$，可得

$$\mathrm{Tr}\,G^{(1)}=\sum_n\frac{\langle n^{(0)},\mathbf{k}|(H^{(1)}+\Sigma^{(1)})|n^{(0)},\mathbf{k}\rangle}{(\omega_+-E_n^{(0)})^2}+\frac{ie\hbar B_z}{2}\sum_{n,m}\frac{\tilde{v}_y^{(n,m)}\tilde{v}_x^{(m,n)}-\tilde{v}_x^{(n,m)}\tilde{v}_y^{(m,n)}}{(\omega_+-E_n^{(0)})^2(\omega_+-E_m^{(0)})}, \tag{S58}$$

其中，$\tilde{v}_\mu^{(n,m)}=\langle n^{(0)},\ \mathbf{k}|\tilde{v}_\mu|m^{(0)},\ \mathbf{k}\rangle$ 表示 $\tilde{}\mathbf{v}$ 的分量 $\mu=x,\ y,\ z$，为便于阅读，以下省略标签 $\mathbf{k}\ \omega$。现在，我们将 $\tilde{v}$ 的依赖关系改写为未经过自能修正的裸能带速度，定义如下：

$$\mathbf{v}=\hbar^{-1}\nabla_{\mathbf{k}}H^{(0)}. \tag{S59}$$

于是我们有

$$\hbar v_\mu^{(n,m)} = (\epsilon_m^{(0)} - \epsilon_n^{(0)}) \langle n^{(0)}, \mathbf{k} | \partial_{k_\mu} m^{(0)}, \mathbf{k} \rangle + \delta_{n,m} \partial_{k_\mu} \epsilon_m^{(0)}, \tag{S60}$$

$$\hbar \tilde{v}_\mu^{(n,m)} = (E_m^{(0)} - E_n^{(0)}) \langle n^{(0)}, \mathbf{k} | \partial_{k_\mu} m^{(0)}, \mathbf{k} \rangle + \delta_{n,m} \partial_{k_\mu} E_m^{(0)}, \tag{S61}$$

并且我们可以将式（S58）中第二项的分子写为

$$\tilde{v}_y^{(n,m)} \tilde{v}_x^{(m,n)} - \tilde{v}_x^{(n,m)} \tilde{v}_y^{(m,n)} = \begin{cases} -2i \frac{(E_n^{(0)} - E_m^{(0)})^2}{(\epsilon_n^{(0)} - \epsilon_m^{(0)})^2} \mathrm{Im}(v_x^{(n,m)} v_y^{(m,n)}) & \text{for } n \neq m, \\ 0 & \text{for } n = m, \end{cases} \tag{S62}$$

其中右侧的速度 现在确实是裸能带速度。因此我们可以写为

$$\mathrm{Tr}\, G^{(1)} = \sum_n \frac{\langle n^{(0)}, \mathbf{k} | (H^{(1)} + \Sigma^{(1)}) | n^{(0)}, \mathbf{k} \rangle}{(\omega_+ - E_n^{(0)})^2} + e\hbar B_z \sum_{n, m \neq n} \frac{(E_n^{(0)} - E_m^{(0)})^2}{(\epsilon_n^{(0)} - \epsilon_m^{(0)})^2} \frac{\mathrm{Im}(v_x^{(n,m)} v_y^{(m,n)})}{(\omega_+ - E_n^{(0)})^2 (\omega_+ - E_m^{(0)})}. \tag{S63}$$

现在我们通过以下方式分离式（S63）的极点

$$\begin{aligned} &\frac{\mathrm{Im}(v_x^{(n,m)} v_y^{(m,n)})}{(\omega_+ - E_n^{(0)})^2 (\omega_+ - E_m^{(0)})} \\ &= \frac{\mathrm{Im}(v_x^{(n,m)} v_y^{(m,n)})}{(E_n^{(0)} - E_m^{(0)})(\omega_+ - E_n^{(0)})^2} - \frac{\mathrm{Im}(v_x^{(n,m)} v_y^{(m,n)})}{(E_n^{(0)} - E_m^{(0)})^2 (\omega_+ - E_n^{(0)})} + \frac{\mathrm{Im}(v_x^{(n,m)} v_y^{(m,n)})}{(E_n^{(0)} - E_m^{(0)})^2 (\omega_+ - E_m^{(0)})}. \end{aligned} \tag{S64}$$

将第三项中的所有 n 和 m 变量互换，可以证明第二项和第三项等价，

$$\sum_{n, m \neq n} \frac{\mathrm{Im}(v_x^{(n,m)} v_y^{(m,n)})}{(E_n^{(0)} - E_m^{(0)})^2 (\omega_+ - E_m^{(0)})} = - \sum_{n, m \neq n} \frac{\mathrm{Im}(v_x^{(n,m)} v_y^{(m,n)})}{(E_n^{(0)} - E_m^{(0)})^2 (\omega_+ - E_n^{(0)})}, \tag{S65}$$

因此，具有能带对角自能的格林函数的迹变为

$$\begin{aligned} \mathrm{Tr}\, G^{(1)} =& \sum_n \frac{\langle n^{(0)}, \mathbf{k} | (H^{(1)} + \Sigma^{(1)}) | n^{(0)}, \mathbf{k} \rangle}{(\omega_+ - E_n^{(0)})^2} \\ &+ e\hbar B_z \sum_n \frac{1}{(\omega_+ - E_n^{(0)})^2} \sum_{m \neq n} (E_n^{(0)} - E_m^{(0)}) \frac{\mathrm{Im}(v_x^{(n,m)} v_y^{(m,n)})}{(\epsilon_n^{(0)} - \epsilon_m^{(0)})^2} \\ &- 2e\hbar B_z \sum_n \frac{1}{\omega_+ - E_n^{(0)}} \sum_{m \neq n} \frac{\mathrm{Im}(v_x^{(n,m)} v_y^{(m,n)})}{(\epsilon_n^{(0)} - \epsilon_m^{(0)})^2}, \end{aligned} \tag{S66}$$

现在可将其表示为裸的非相互作用能带速度。这一点至关重要，因为它使结果能够直接与该能带的贝里联络联系起来，该联络定义为 [5]

$$\mathcal{A}_\mu^{(n,m)} = i \langle n^{(0)}, \mathbf{k} | \partial_{k_\mu} m^{(0)}, \mathbf{k} \rangle. \tag{S67}$$

利用 $\langle n^{(0)},\ \mathbf{k} | \partial_{k_\mu} H^{(0)} | m^{(0)},\ \mathbf{k} \rangle = \hbar v_\mu^{(n,m)} = \hbar \langle n^{(0)},\ \mathbf{k} | v_\mu | m^{(0)},\ \mathbf{k} \rangle = (\epsilon_m^{(0)} - \epsilon_n^{(0)}) \langle n^{(0)},\ \mathbf{k} | \partial_{k_\mu} m^{(0)},\ \mathbf{k} \rangle$，我们看到贝里曲率 [1, 27] 与速度的关系为

$$\Omega_n^z \equiv -2 \sum_{m \neq n} \mathrm{Im}(\mathcal{A}_x^{(n,m)} \mathcal{A}_y^{(m,n)}) = -2\hbar^2 \sum_{m \neq n} \frac{\mathrm{Im}(v_x^{(n,m)} v_y^{(m,n)})}{(\epsilon_n^{(0)} - \epsilon_m^{(0)})^2}, \tag{S68}$$

其中直接包含了 w 在公式（S66）的第三项中。此外，我们定义重整化轨道

磁矩作为

$$\tilde{m}_n^z \equiv -\frac{1}{B_z}\langle n^{(0)},\mathbf{k}|(H^{(1)}+\Sigma^{(1)})|n^{(0)},\mathbf{k}\rangle - e\hbar\sum_{m\neq n}(E_n^{(0)}-E_m^{(0)})\frac{\mathrm{Im}(v_x^{(n,m)}v_y^{(m,n)})}{(\epsilon_n^{(0)}-\epsilon_m^{(0)})^2}, \tag{S69}$$

其中包含局域轨道磁矩 $\langle n^{(0)},\mathbf{k}|(H^{(1)}+\Sigma^{(1)})|n^{(0)},\mathbf{k}\rangle$ 以及巡游轨道磁矩贡献。这并不是传统轨道磁矩，后者定义为 [3, 27–29]

$$m_n^z \equiv -\frac{1}{B_z}\langle n^{(0)},\mathbf{k}|H^{(1)}|n^{(0)},\mathbf{k}\rangle - e\hbar\sum_{m\neq n}\frac{\mathrm{Im}(v_x^{(n,m)}v_y^{(m,n)})}{\epsilon_n^{(0)}-\epsilon_m^{(0)}}, \tag{S70}$$

但在非相互作用极限 $\Sigma\to -i0^+$下，或当 Σ 可视为与能带无关的常数时，它会恢复为传统轨道磁矩。因此，我们将其称为重整化的轨道磁矩。综上，这定义了 $G^{(1)}$ 的迹，表示为

$$\mathrm{Tr}\,G^{(1)} = B_z\frac{e}{\hbar}\sum_n\frac{\Omega_n^z}{\omega_+-E_n^{(0)}} - B_z\sum_n\frac{\tilde{m}_n^z}{(\omega_+-E_n^{(0)})^2}. \tag{S71}$$

最后，取该迹的虚部即可得到谱函数。为将其与裸谱函数和格林函数联系起来，我们注意到，在

$$G_n^{(0)} = \frac{1}{\omega_+-E_n^{(0)}}, \tag{S72}$$

我们有

$$\frac{1}{(\omega_+-E_n^{(0)})^2} = [G_n^{(0)}]^2 = -Z_n\frac{\partial G_n^{(0)}}{\partial\omega}, \tag{S73}$$

其中，后一个等式由

$$-\frac{\partial G_n^{(0)}}{\partial\omega} = (1-\partial_\omega\Sigma_n^{(0)})[G_n^{(0)}]^2 = Z_n^{-1}[G_n^{(0)}]^2, \tag{S74}$$

其中广义复准粒子剩余权重为

$$Z_n \equiv (1-\partial_\omega\Sigma_n^{(0)})^{-1}. \tag{S75}$$

复数 Z_n 与格林函数的复数导数相乘，因此必须计算格林函数的实部和虚部。

通过 $\mathrm{Im}\,G_n^{(0)} = -\pi A_n^{(0)}$定义非相互作用谱函数 $A_n^{(0)}$后，我们得到最终表达式

$$\begin{aligned} A^{(1)}(\mathbf{k},\omega;B_z) = \mathrm{Tr}[\hat{A}^{(1)}(\mathbf{k},\omega)] = {}& \frac{eB_z}{\hbar}\sum_n\Omega_n^z(\mathbf{k})A_n^{(0)}(\mathbf{k},\omega) \\ & + B_z\sum_n\mathrm{Re}\big[Z_n(\mathbf{k},\omega)\,\tilde{m}_n^z(\mathbf{k},\omega)\big]\frac{\partial A_n^{(0)}(\mathbf{k},\omega)}{\partial\omega} \\ & - \frac{B_z}{\pi}\sum_n\mathrm{Im}\big[Z_n(\mathbf{k},\omega)\,\tilde{m}_n^z(\mathbf{k},\omega)\big]\frac{\partial\mathrm{Re}\,G_n^{(0)}(\mathbf{k},\omega)}{\partial\omega}, \end{aligned} \tag{S76}$$

如正文中式（15）所述。这三项具有不同的线型。贝里曲率乘以洛伦兹线形 $A_n^{(0)}$本身，因此表现为谱权重的变化。重整化轨道磁矩的实部乘以 $\partial_\omega A_n^{(0)}$，因此表现为峰位的偏移。虚部仅在自能为复数时才非零，它乘以色散线形 $\partial_\omega\,\mathrm{Re}\,G_n^{(0)}$。这三种线形线性独立，因此可以通过拟合将贝里曲率与轨道磁矩区分开来。

最后，如果 $\mathrm{Im}\,\Sigma^{(0)}$ 可以近似为与能带无关的常数，式（S76）可简化为

$$A^{(1)}(\mathbf{k},\omega;B_z)=\frac{eB_z}{\hbar}\sum_n \Omega_n^z(\mathbf{k})\,A_n^{(0)}(\mathbf{k},\omega)+B_z\sum_n Z_n\,m_n^z(\mathbf{k})\frac{\partial A_n^{(0)}}{\partial\omega}, \tag{S77}$$

其中 m_n^z 现在表示裸非相互作用轨道磁矩，而 Z_n 表示实准粒子剩余权重，后者本身通常近似为与能量无关的准粒子权重。